



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

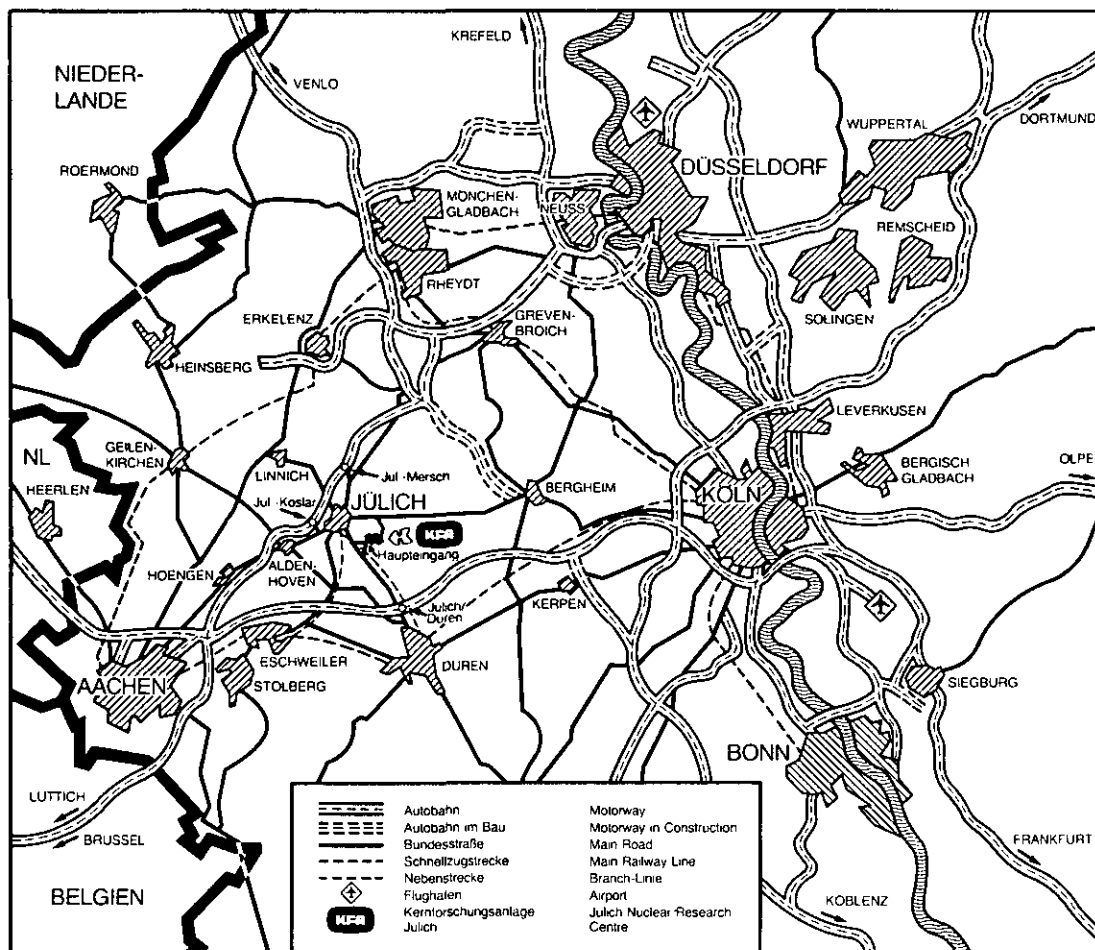
Institut für Reaktorwerkstoffe

**Messung der Nachwärmeproduktion
und Dosisleistung abgebrannter
AVR-Brennelemente**

von

R. Engelstädter

Jül - Spez - 281
November 1984
ISSN 0343-7639



Als Manuskript gedruckt

Spezielle Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 281

Institut für Reaktorwerkstoffe Jül - Spez - 281

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/610 · Telex: 833556-0 kf d

**Messung der Nachwärmeproduktion
und Dosisleistung abgebrannter
AVR-Brennelemente**

von

R. Engelstädter

INHALTSVERZEICHNIS

Seite:

ABSTRACT

KURZFASSUNG	1
1. EINLEITUNG	2
2. DIE ZWISCHENLAGERUNG ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE	3 - 4
3. DATEN ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE ...	5
3.1 Abbrandbestimmung	5
3.2 Bestimmung des Schwermetall- und Spalt- produktinventars	6 - 7
3.2.1 Schwermetallinventar	7 - 9
3.2.2 Spaltproduktinventar	9 - 12
3.3 Berechnung der Nachwärme	12 - 17
4. REICHWEITE DER STRAHLUNG IM AVR-BRENN- ELEMENT	18
4.1 α -Strahlung	18 - 19
4.2 β -Strahlung	19 - 21
5. KALORIMETRISCHE MESSUNG DER IM BRENNELE- MENT ABSORBIERTEN ENERGIE	22
5.1 Auswahl und Beschreibung des Kalorimeters	22 - 31
5.2 Versuchsaufbau	31 - 33
5.3 Durchführung von Messungen	33
5.3.1 Temperaturmessung	33 - 37
5.3.2 Bestimmung der Wärmekapazität einer Graphitkugel	37 - 39

Seite:

5.3.3	Ermittlung der Zeitkonstante	39 - 41
5.4	Auswertung der kalorimetrischen Messungen	41 - 44
6.	MESSUNG DER VON DEN BRENNELEMENTEN EMITTIERTEN γ -STRAHLUNGSENERGIE	45 - 49
7.	ERGEBNISSE	50
7.1	Nachwärmeleistung abgebrannter AVR- Brennelemente	50 - 51
7.2	Vergleich mit berechneten Nachwärme- leistungen	52 - 54
7.3	Ergebnisdiskussion	54 - 63
8.	ZUSAMMENFASSUNG	64 - 65
9.	LITERATUR	66 - 69

ABSTRACT

Intermediate stores must be provided for the storage of spent fuel elements from the high-temperature reactors AVR and THTR-300. Exact specification of the fuel element data is required for the optimum and reliable design of these stores. In the present paper, the data on the afterheat production and dose rate of spent AVR fuel elements prepared by the ORIGEN computer program are verified by measurements.

Individual measurements of afterheat and dose rate were implemented on 17 AVR fuel elements with decay periods of 150 days and more than four years, and burnups between 4,1 and 16,4 % fima were implemented in the HOT CELLS at the Jülich Nuclear Research Centre.

The radiation energy absorbed in the fuel elements and converted into heat was measured with a calorimeter, whereas the emitted radiation fraction was determined via dose rate measurements.

The measured results for fuel elements with decay periods of more than one year are in good agreement with the data from ORIGEN. In the case of fuel elements with shorter decay periods (approx. 150 days) in part considerably lower values were measured which can be explained by the fact that the power gradient in time of the fuel elements in the reactor can vary considerably whereas mean are included in the ORIGEN computations assuming full-load operation.

On the whole it has become apparent that the afterheat output of fuel elements from high-temperature reactors for the decay periods relevant in storage for lengthy periods of time can be described well with ORIGEN.

KURZFASSUNG

Für die Hochtemperatur-Reaktoren AVR und THTR-300 sind Zwischenlager zur Aufbewahrung der abgebrannten Brennelemente zu schaffen. Die optimale und zuverlässige Auslegung dieser Lager erfordert die exakte Spezifikation der Brennelementdaten. In der vorliegenden Arbeit werden die mit dem Rechenprogramm ORIGIN erstellten Daten zur Nachwärmeproduktion und Dosisleistung abgebrannter AVR-Brennelemente durch Messungen verifiziert.

In den HEISSEN ZELLEN der Kernforschungsanlage Jülich wurden an 17 AVR-Brennelementen mit Abklingzeiten von 150 Tagen und mehr als 4 Jahren und Abbränden zwischen 4,1 und 16,4 % fima Einzelmessungen der Nachwärme- und Dosisleistung durchgeführt.

Die in den Brennelementen absorbierte und in Wärme umgewandelte Strahlungsenergie wurde mit einem Kalorimeter gemessen, während der emittierte Strahlungsanteil über Dosisleistungsmessungen erfaßt werden konnte.

Die Meßergebnisse für Brennelemente mit Abklingzeiten von mehr als 1 Jahr stimmen gut mit den Daten von ORIGIN überein. Bei Brennelementen mit geringen Abklingzeiten (ca. 150 Tage) wurden zum Teil erheblich geringere Werte gemessen, was damit zu erklären ist, daß der zeitliche Leistungsverlauf der Brennelemente im Reaktor stark unterschiedlich sein kann, während in die ORIGIN-Rechnungen unter Annahme eines Vollastbetriebes Mittelwerte eingehen.

Insgesamt hat sich gezeigt, daß die Nachwärmeleistung von Brennelementen aus Hochtemperatur-Reaktoren für die bei der Aufbewahrung über längere Zeiträume zu berücksichtigenden Abklingzeiten mit ORIGIN gut beschrieben werden kann.

1. EINLEITUNG

Für die während des Betriebes der Kugelhaufenreaktoren AVR und des im Bau befindlichen THTR-300 anfallenden abgebrannten Brennelemente sind bis zur Schließung des Hochtemperatur-Brennstoffkreislaufs Zwischenlagermöglichkeiten zu schaffen.

Zur weiteren Sicherung der AVR-Entsorgung hat die KFA daher 1981 ein Trockenlager in Betrieb genommen, in dem abgebrannte AVR-Brennelemente mit einer Mindestkühlzeit von zwei Jahren im Unterschied zu der bisherigen Wasserbecken-Lagertechnik, in Edelstahlkannen zu je 950 Brennelementen in einer Heißen Zelle gestapelt und ausschließlich durch Naturkonvektion gekühlt werden. Zur Zeit wird von der KFA die Errichtung eines Behälterlagers geplant, in dem zukünftig alle 275.000 abgebrannten Brennelemente des AVR bis zu ihrer Endlagerung zwischengelagert werden sollen.

Für die Auslegung der Lager war die exakte Spezifikation der Brennelementdaten der einzulagernden Brennelemente erforderlich. Ein großer Teil der bisher vorliegenden Brennelementdaten basierte auf teilweise zu pessimistischen Berechnungen. Um eine optimale und zugleich zuverlässige Auslegung sicherstellen zu können, wurden die berechneten Daten, die für die Sicherheit der Lager von besonderer Bedeutung sind, durch Messungen überprüft.

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit der Messung der Nachwärme- und Dosisleistung abgebrannter AVR-Brennelemente und dem Vergleich der Ergebnisse mit den im Rechenprogramm ORIGIN berechneten Daten.

2. DIE ZWISCHENLAGERUNG ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE

Das Versuchskernkraftwerk der Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor (AVR) ist seit Dezember 1967 in Betrieb. Bei einer elektrischen Leistung von 15 MW werden täglich etwa 50 frische Brennelemente zugegeben und seit Erreichen des Gleichgewichtszustandes Anfang 1973 ebensoviele abgebrannte Brennelemente entnommen und in Edelstahl-Kannen (AVR-Kannen) zu je 50 Stück abgefüllt. Die AVR-Kannen werden mit der AVR-Glocke zu den HEISSEN ZELLEN der KFA transportiert und dort in Wasserbecken zwischengelagert (Abb. 1).

Die Einlagerung im Wasserbecken der HEISSEN ZELLEN hat Anfang 1973 begonnen. Ende 1977 war die maximale Lagerkapazität mit 65.000 Brennelementen ausgeschöpft. Zur Erweiterung der Zwischenlagerkapazität wurde daher ein weiteres Wasserbecken, das zur Beckenanlage der ZFR-Technikumshalle gehört, 1978 in Betrieb genommen. Bis Ende 1978 wurden in dieses Becken 28.500 AVR-Brennelemente aus dem Wasserbecken der HEISSEN ZELLEN umgelagert.

Da der Entsorgungsbeitrag der Wiederaufarbeitung und der Endlagerung im Salzbergwerk ASSE wegen der terminlichen Unsicherheiten nicht berücksichtigt werden konnte, wurde 1978 mit der Errichtung eines weiteren Zwischenlagers, des sogenannten AVR-Trockenlagers (AVR-TL), mit einer Kapazität von 72.000 Brennelementen begonnen, das Ende 1981 in Betrieb ging.

In diesem Trockenlager erfolgt die Zwischenlagerung in Edelstahl-Kannen (AVR-TL-Kannen) zu je 950 Brennelementen. Die Nachwärme wird durch Naturzugkühlung aus dem Lagergestell abgeführt. Die Brennelemente werden nach ihrer Sortierung in den HEISSEN ZELLEN in die AVR-TL-Kannen abgefüllt und mit dem AVR-Transportbehälter zum AVR-Trockenlager transportiert.

Somit verfügt die KFA z.Zt. über eine Zwischenlagerkapazität von 165.000 Brennelementen.

3. DATEN ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE

Bei der Entwicklung und Erprobung von HTR-Brennelementen werden im Rahmen der Nachuntersuchungsprogramme an abgebrannten AVR-Brennelementen eine Reihe von Nuklear- und Werkstoffdaten bereitgestellt. Im folgenden wird jedoch nur auf die Daten eingegangen, die bei der Auslegung von Transport- und Lagereinrichtungen von besonderer Bedeutung sind.

3.1 Abbrandbestimmung

In Kugelhaufenreaktoren, wie z.B. dem AVR, kann der Abbrand einzelner Brennelemente im Gegensatz zu anderen Reaktoren nicht exakt vorausberechnet werden, weil der Weg des einzelnen Brennelementes im Core und die Anzahl der Coredurchläufe nicht genau bekannt sind. Daher werden im AVR die Abbrände der Brennelemente nach jedem Coredurchlauf in der Beschickungsanlage gemessen, um abgebrannte Brennelemente aussortieren zu können./20/.

Darüber hinaus werden in der KFA weitere Abbrandmessungen an einzelnen Brennelementen im Rahmen der Nachuntersuchungsprogramme durchgeführt /5/.

Eine zerstörungsfreie Untersuchungsmethode erlaubt die Durchführung einer Abbrandmessung durch quantitative gamma-spektrometrische Bestimmung des Cs-137, das sich wegen seiner langen Halbwertszeit von 30 Jahren und der relativ hohen Spaltausbeute besonders gut dafür eignet. Aus der Aktivität des Cs-137 wird auf die Anzahl der Uran-Spaltungen geschlossen. Bei bekannter Spaltstoff-Einwaage kann daraus der Abbrand berechnet werden. Wegen des relativ geringen Zeitaufwandes von etwa 0,5 h pro Brennelement eignet sich dieses Verfahren für Reihenmessungen. Der Fehler der Meßwerte kann mit $\pm 5 \%$ angegeben werden /4/.

Ein anderes, nicht zerstörungsfreies Verfahren beruht auf der massenspektrometrischen Bestimmung der Isotopenverhältnisse des Urans, aus denen der Abbrand berechnet werden kann. Wegen des großen Aufwandes wird diese Methode nur für Kontrollmessungen eingesetzt.

3.2 Bestimmung des Schwermetall- und Spaltproduktinventars

Bei Kenntnis des zeitlichen Neutronenflußverlaufes und der Wirkungsquerschnitte kann das Schwermetall- und Spaltproduktinventar der Brennelemente berechnet werden.

Für AVR-Brennelemente sind mit dem Rechenprogramm ORIGIN solche Berechnungen für Abbrände von 5, 10 und 15 % fima und Abklingzeiten > 150 Tage durchgeführt worden /1/. Dabei wird das Brennelement mit einem schrittweise vorgebbaren Neutronenfluß über eine definierte Anzahl von Zeitschritten gleicher Länge "abgebrannt". Anschließend wird der Fluß "abgeschaltet" und das zu beliebiger Zeit entstandene Schwermetall- und Spaltproduktinventar, bezogen auf den Abschaltzeitpunkt, berechnet. Die ORIGIN-Datenbank enthält die Daten von insgesamt 99 Schwermetall- und 460 Spaltprodukt-Isotopen.

Diese Berechnungen können mit gamma-spektrometrischen Inventarbestimmungen verglichen werden.

Ein wichtiges Ergebnis solcher berechneten Inventarwerte zeigt Abb. 2, in der die Radioaktivität der Schwermetall- und Spaltproduktisotope abgebrannter AVR-Brennelemente als Funktion des Abbrandes und der Abklingzeit dargestellt ist.

Die Abbildung läßt erkennen, daß die Radioaktivität eines bis zu 5 % fima abgebrannten Brennelementes bei Entnahme aus dem AVR ungefähr dreimal so hoch ist, wie bei einem bis 15 % fima und fast doppelt so groß wie bei einem bis 10 % fima abgebrannten Brennelement. Anders sehen dagegen die Verhältnisse nach vier Jahren Abklingzeit aus. Das hochabgebrannte Brennelement ist ungefähr noch doppelt so aktiv wie das auf 5 % fima und knapp eineinhalbmals so aktiv wie das auf 10 % abgebrannte.

Der Grund dafür ist der unterschiedliche Verlauf der Spaltleistung im Core. Bei einem hochabgebrannten Brennelement wurden im Gegensatz zum niedrigabgebrannten wegen der größeren Zahl an Spaltungen mehr langlebige Spaltprodukte gebildet. Andererseits beinhaltet das niedrigabgebrannte bei der Entnahme aus dem Reaktor mehr kurzlebige Spaltprodukte, weil dessen Leistung vor Bestrahlungsende noch höher war.

Bei den hochabgebrannten Brennelementen bewirkt die geringe Spaltleistung zum Bestrahlungsende für die kurzlebigen Spaltprodukte eine geringere Gleichgewichtskonzentration während der Bestrahlung.

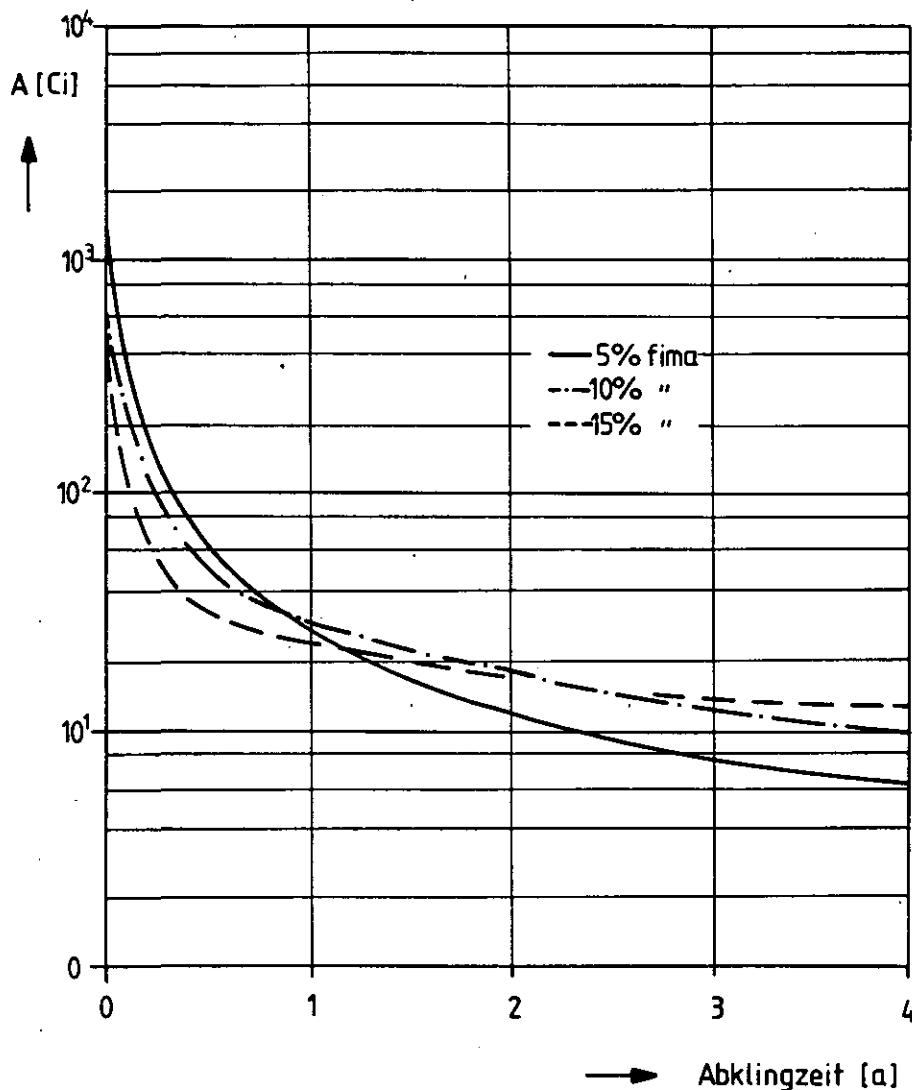


Abb. 2: RADIOAKTIVITÄT ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE

3.2.1 Schwermetallinventar

In der folgenden Tabelle sind die wesentlichen Schwermetalle abgebrannter AVR-Brennelemente mit einem ursprünglichen Schwermetalleinsatz von rund 5 g Th-232 und 1 g U-235 für Abbrände von 5, 10 und 15 % fima zum Zeitpunkt der Entnahme aus dem Reaktor in g/BE bzw. Ci/BE angegeben.

Nuklid	Abbrand in % fima					
	5		10		15	
	SMG g/BE	A Ci/BE	SMG g/BE	A Ci/BE	SMG g/BE	A Ci/BE
Th-232	4,93	$5,39 \cdot 10^{-7}$	4,85	$5,31 \cdot 10^{-7}$	4,73	$5,17 \cdot 10^{-7}$
Pa-233	$3,85 \cdot 10^{-3}$	78,70	$2,95 \cdot 10^{-3}$	60,30	$2,64 \cdot 10^{-3}$	54,10
U-233	$3,51 \cdot 10^{-2}$	$3,33 \cdot 10^{-4}$	$7,20 \cdot 10^{-2}$	$6,82 \cdot 10^{-4}$	$9,47 \cdot 10^{-2}$	$8,79 \cdot 10^{-4}$
U-234	$1,07 \cdot 10^{-2}$	$6,62 \cdot 10^{-5}$	$1,37 \cdot 10^{-2}$	$8,46 \cdot 10^{-5}$	$2,12 \cdot 10^{-2}$	$1,31 \cdot 10^{-4}$
U-235	$6,61 \cdot 10^{-1}$	$1,42 \cdot 10^{-6}$	$3,34 \cdot 10^{-1}$	$7,17 \cdot 10^{-7}$	$1,07 \cdot 10^{-1}$	$2,29 \cdot 10^{-7}$
U-236	$6,17 \cdot 10^{-2}$	$3,91 \cdot 10^{-6}$	$1,18 \cdot 10^{-1}$	$7,46 \cdot 10^{-6}$	$1,49 \cdot 10^{-1}$	$9,45 \cdot 10^{-6}$
U-238	$6,41 \cdot 10^{-2}$	$2,13 \cdot 10^{-8}$	$2,38 \cdot 10^{-2}$	$2,07 \cdot 10^{-8}$	$5,86 \cdot 10^{-2}$	$1,95 \cdot 10^{-8}$
Np-237	$8,96 \cdot 10^{-4}$	$6,32 \cdot 10^{-7}$	$4,59 \cdot 10^{-3}$	$3,24 \cdot 10^{-6}$	$1,14 \cdot 10^{-2}$	$8,05 \cdot 10^{-6}$
Np-239	$6,55 \cdot 10^{-6}$	1,52	$6,33 \cdot 10^{-6}$	1,47	$5,98 \cdot 10^{-6}$	1,39
Pu-238	$5,59 \cdot 10^{-5}$	$9,31 \cdot 10^{-4}$	$7,20 \cdot 10^{-4}$	$1,22 \cdot 10^{-2}$	$3,16 \cdot 10^{-3}$	$5,34 \cdot 10^{-2}$
Pu-239	$4,97 \cdot 10^{-4}$	$3,05 \cdot 10^{-5}$	$6,12 \cdot 10^{-4}$	$3,76 \cdot 10^{-5}$	$9,76 \cdot 10^{-4}$	$5,99 \cdot 10^{-5}$
Pu-240	$2,23 \cdot 10^{-4}$	$4,91 \cdot 10^{-5}$	$4,88 \cdot 10^{-4}$	$1,07 \cdot 10^{-4}$	$8,10 \cdot 10^{-4}$	$1,78 \cdot 10^{-4}$
Pu-241	$5,76 \cdot 10^{-5}$	$5,86 \cdot 10^{-3}$	$2,20 \cdot 10^{-4}$	$2,23 \cdot 10^{-2}$	$3,92 \cdot 10^{-4}$	$3,99 \cdot 10^{-2}$

SMG = Schwermetallgehalt

A = Aktivität

Tab. 1: SCHWERMETALLINVENTAR ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE ZUM ZEITPUNKT DER ENTNAHME AUS DEM REAKTOR

In Abb. 3 ist der Schwermetallgehalt abgebrannter AVR-Brennelemente als Funktion von Abbrand und Fluenz dargestellt.

Die Nuklide Pa-233 und Np-239 besitzen bei der Entnahme aus dem Reaktor eine sehr hohe Aktivität, haben jedoch wegen ihrer kurzen Halbwertszeiten (27 Tage bzw. 2,3 Tage) nach Abklingzeiten von mehr als einem Jahr keine Bedeutung mehr.

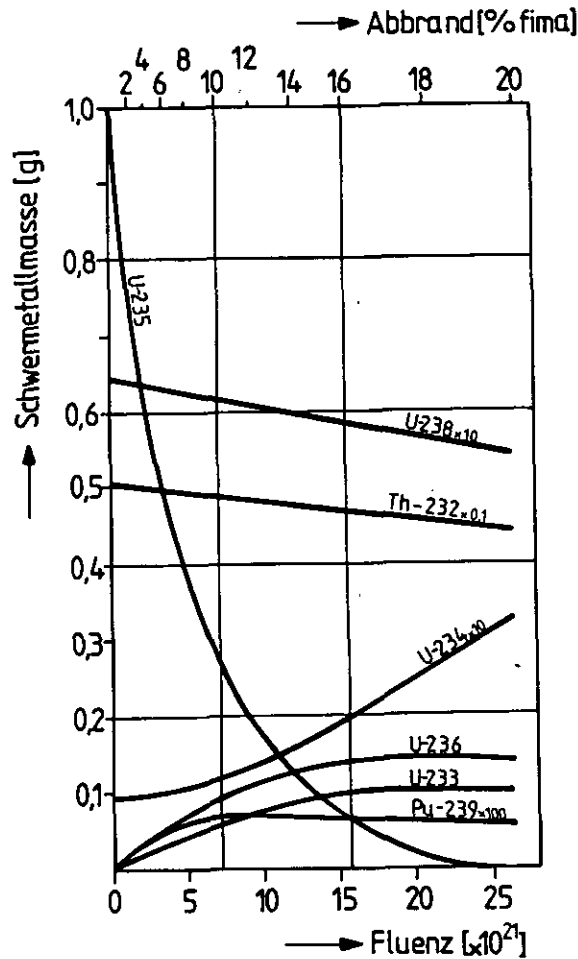


Abb. 3: SCHWERMETALLGEHALT ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE

3.2.2 Spaltproduktinventar

Die Ergebnisliste der Spaltproduktinventarberechnung des ORIGIN-Rechenprogramms enthält die Daten von 460 Spaltprodukt-Isotopen, die während der Bestrahlung im Brennelement entstehen. Der größte Teil davon ist instabil und zerfällt daher unter Aussendung von Strahlung. Nur eine geringe Zahl von 18 Spaltprodukten hat für die Nachwärmeentwicklung und Dosisleistung der Brennelemente nach längerer Abklingzeit eine Bedeutung, weil die übrigen einerseits sehr kurze Halbwertszeiten haben und andererseits nur in unbedeutenden Mengen produziert werden /1/.

In Tab. 2 sind die Isotopenmengen und Aktivitäten der wichtigsten Spaltprodukte für AVR-Brennelemente mit Abbränden von 5, 10 und 15 % fima zusammengestellt. Die mit einem "x" versehenen Spaltprodukte haben bei Abklingzeiten von mehr als 1 Jahr keine Bedeutung mehr, tragen jedoch bei frischen Brennelementen sehr stark zur Radioaktivität und Nachwärmeleistung bei.

Isotop	$T_{1/2}$	Abbrand in % fima					
		5		10		15	
		SIM g/GE	A Ci/BE	SIM g/BE	A Ci/BE	SIM g/BE	A Ci/BE
Kr-85	10,70a	$3,48 \cdot 10^{-4}$	$1,36 \cdot 10^{-1}$	$7,04 \cdot 10^{-4}$	$2,74 \cdot 10^{-1}$	$9,95 \cdot 10^{-4}$	$3,88 \cdot 10^{-1}$
Sr-89	X 52,00d	$8,52 \cdot 10^{-4}$	24,10	$4,13 \cdot 10^{-4}$	11,70	$1,88 \cdot 10^{-4}$	5,22
Sr-90	28,00a	$6,22 \cdot 10^{-4}$	$8,79 \cdot 10^{-1}$	$1,25 \cdot 10^{-2}$	1,77	$1,78 \cdot 10^{-2}$	2,51
Y-90	(64,10h)	$1,64 \cdot 10^{-6}$	$8,93 \cdot 10^{-1}$	$3,32 \cdot 10^{-6}$	1,81	$4,71 \cdot 10^{-6}$	2,56
Y-91	X 58,50d	$1,21 \cdot 10^{-3}$	29,50	$5,80 \cdot 10^{-4}$	14,20	$2,38 \cdot 10^{-4}$	5,82
Zr-95	X 65,50d	$1,51 \cdot 10^{-3}$	31,90	$7,43 \cdot 10^{-4}$	15,70	$3,04 \cdot 10^{-4}$	6,44
Nb-95	X 35,00d	$9,28 \cdot 10^{-4}$	36,50	$4,89 \cdot 10^{-4}$	19,20	$1,85 \cdot 10^{-4}$	7,29
Ru/Rh-103	X 39,00d	$4,33 \cdot 10^{-4}$	27,80	$1,89 \cdot 10^{-4}$	12,10	$7,56 \cdot 10^{-5}$	4,84
Ru/Rh-106	1,01a	$3,49 \cdot 10^{-4}$	2,49	$4,05 \cdot 10^{-4}$	2,80	$2,41 \cdot 10^{-4}$	1,65
Sb-125	2,70a	$2,98 \cdot 10^{-5}$	$3,16 \cdot 10^{-2}$	$5,73 \cdot 10^{-5}$	$6,07 \cdot 10^{-2}$	$7,35 \cdot 10^{-5}$	$7,79 \cdot 10^{-2}$
Cs-134	2,30a	$2,91 \cdot 10^{-4}$	$3,79 \cdot 10^{-1}$	$1,33 \cdot 10^{-3}$	1,73	$2,77 \cdot 10^{-3}$	3,61
Cs-137	30,00a	$1,01 \cdot 10^{-2}$	$8,81 \cdot 10^{-1}$	$2,06 \cdot 10^{-2}$	1,79	$2,94 \cdot 10^{-2}$	2,56
Ba-137m	(2,60m)	$1,53 \cdot 10^{-9}$	$8,24 \cdot 10^{-1}$	$3,11 \cdot 10^{-9}$	1,67	$4,45 \cdot 10^{-9}$	2,40
Ce-141	X 33,00d	$9,96 \cdot 10^{-4}$	28,50	$4,59 \cdot 10^{-4}$	13,10	$2,19 \cdot 10^{-4}$	6,25
Ce-144	284,00d	$6,27 \cdot 10^{-3}$	20,00	$6,32 \cdot 10^{-4}$	20,20	$3,15 \cdot 10^{-3}$	10,10
Pr-144	(17,00m)	$2,66 \cdot 10^{-7}$	20,10	$2,68 \cdot 10^{-7}$	20,20	$1,33 \cdot 10^{-7}$	10,10
Pm-147	2,60a	$2,95 \cdot 10^{-3}$	2,74	$3,49 \cdot 10^{-3}$	3,24	$2,14 \cdot 10^{-3}$	1,99
Eu-154	16,00a	$6,01 \cdot 10^{-5}$	$8,72 \cdot 10^{-3}$	$3,05 \cdot 10^{-4}$	$4,43 \cdot 10^{-2}$	$6,72 \cdot 10^{-4}$	$9,76 \cdot 10^{-2}$

SIM = Spaltprodukt-Isotopenmenge

A = Aktivität

X = Spaltprodukte mit kleiner Halbwertszeit

Tab. 2: ISOTOPENMENGE UND AKTIVITÄT DER WICHTIGSTEN SPALT-PRODUKTE ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE ZUM ZEITPUNKT DER ENTNAHME AUS DEM REAKTOR

Der Einfluß der Abklingzeit auf die Radioaktivität der Spaltprodukte wird in Abb. 4 am Beispiel eines auf 15 % fima abgebrannten AVR-Brennelementes verdeutlicht.

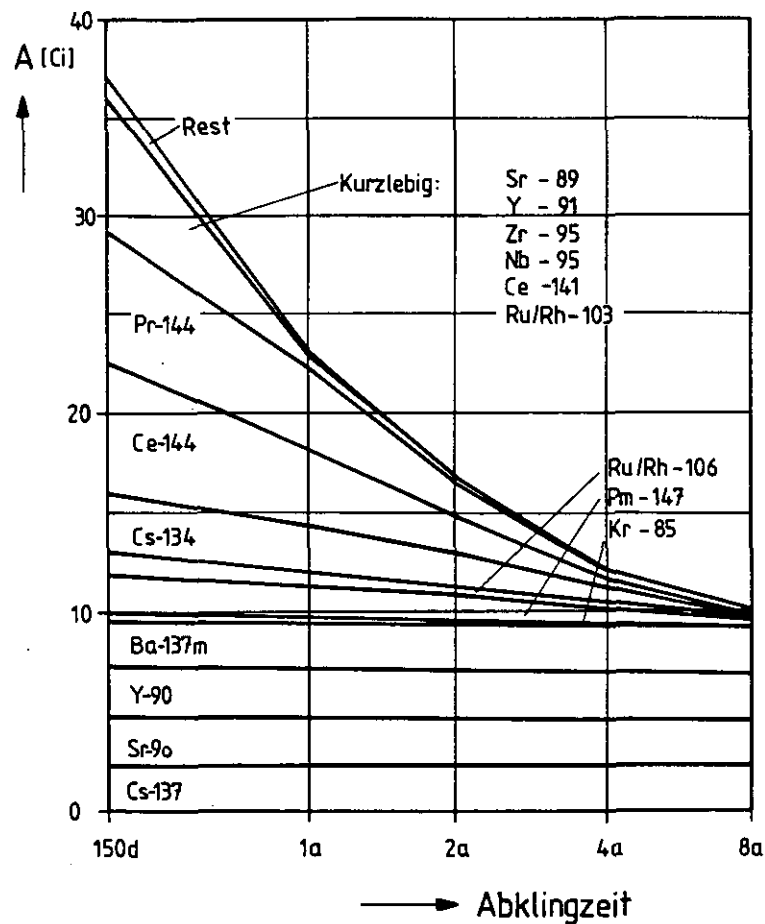


Abb. 4: ANTEIL DER EINZELNEN SPALTPRODUKTE AN DER GESAMT-RADIOAKTIVITÄT EINES AUF 15 % FIMA ABGEBRANNTEN AVR-BRENNELEMENTES

Bei einer Abklingzeit von 150 Tagen beträgt der Anteil der 6 kurzlebigen Spaltprodukte Sr-89, Y-91, Zr-95, Nb-95, Ru/Rh-103 und Ce-141 an der Gesamtaktivität noch 16,4 %, während die 12 langlebigen Spaltprodukte zu 82,2 % beitragen. Der Rest von 442 Spaltprodukten liefert nach 150 Tagen nur noch 1,4 % der Gesamtaktivität. Nach einem Jahr ist der Anteil der langlebigen Spaltprodukte jedoch auf 96,5 % und nach zwei Jahren sogar schon auf 99,1 % gestiegen. Bei Abklingzeiten

von mehr als einem Jahr wird die Radioaktivität und Nachwärme also nur noch von 12 langlebigen Spaltprodukten erzeugt (in Abb. 4 sind die langlebigen Spaltprodukte Sb-125 und Eu-154 nicht enthalten, weil ihr Anteil zu gering ist). Nach mehr als 4 Jahren reduziert sich diese Zahl auf die zwei Spaltprodukte Sr-90 und Cs-137 mit den Nachfolgeprodukten Y-90 und Ba-137m, die dann bereits 91 % der Radioaktivität eines abgebrannten AVR-Brennelementes erzeugen.

3.3 Berechnung der Nachwärme

Die beim radioaktiven Zerfall der Spaltprodukte und der Schwermetalle emittierte Strahlung erzeugt im Brennelement und in der die Strahlung absorbierenden Umgebung Wärme. Der Anteil der Schwermetalle an der Nachwärmeleistung ist jedoch relativ gering. Ihr Beitrag wird bei frischen Brennelementen in der Hauptsache von Pa-233 und Np-239 erzeugt und erreicht mit 4 % zum Entnahmezeitpunkt eines auf 15 % fima abgebrannten Brennelementes ihren größten Wert und verringert sich bei zunehmender Abklingzeit und kleineren Abbränden. Die Nachwärmeleistung hängt vom zeitlichen Verlauf der Spaltleistung im Core, der Abklingzeit und dem Abbrand ab. Für kurze Abklingzeiten bis etwa 30 Tage kommt es dabei im wesentlichen auf die Spaltleistung bei Bestrahlungsende, bei langen Abklingzeiten ab etwa 2 Jahren im wesentlichen auf den Abbrand an.

Für die Berechnung der Nachwärmeleistung abgebrannter Brennelemente besteht zunächst einmal die Möglichkeit, empirisch ermittelte Näherungsformeln, die mit experimentellen Beobachtungen relativ gut übereinstimmen, zu verwenden.

Die Spaltprodukte werden dabei als eine statistische Menge angesehen, was für den zeitlichen Verlauf der β - und γ -Aktivität zu folgenden Gleichungen führt /8/:

$$A_{\beta}(t) = 3,8 \cdot 10^{-6} \cdot t^{-1,2} \frac{\beta\text{-Teilchen}}{\text{s} \cdot \text{Spaltung}} \quad (1)$$

$$A_{\gamma}(t) = 1,9 \cdot 10^{-6} \cdot t^{-1,2} \frac{\gamma\text{-Quanten}}{\text{s} \cdot \text{Spaltung}} \quad (2)$$

Dabei ist t die Zeit nach der Spaltung gemessen in Tagen.

Mit einer mittleren β -Energie von $\bar{E}_{\beta} = 0,4$ MeV und einer mittleren γ -Energie von $\bar{E}_{\gamma} = 0,7$ MeV ermittelt man je Spaltung für die gesamte zeitabhängige Leistung der β - und γ -Strahlung:

$$\dot{Q}_s(t) = A_{\beta}(t) \cdot \bar{E}_{\beta} + A_{\gamma}(t) \cdot \bar{E}_{\gamma} = 2,85 \cdot 10^{-6} \cdot t^{-1,2} \frac{\text{MeV}}{\text{s} \cdot \text{Spaltung}} \quad (3)$$

Für ein abgebranntes Brennelement mit einer mittleren Leistung P_0 erhält man die Nachwärmeleistung aller während der Betriebsdauer T_0 entstandenen Spaltprodukte zur Zeit t nach dem Abschalten durch folgende Näherungsformel:

$$\dot{Q} = 6 \cdot 10^{-3} \cdot P_0 (t^{-0,2} - (t + T_0)^{-0,2}) \quad (4)$$

(t, T_0 in Tagen)

Eine zweite, heute fast ausschließlich angewendete Methode besteht darin, die Nachwärmeleistung über Spaltproduktinventarberechnungen zu bestimmen, wie sie zum Beispiel mit dem Rechenprogramm ORIGEN durchgeführt werden. Hierbei läßt sich die Radioaktivität aller Spaltprodukte als Funktion von Abbrand und Abklingzeit der Brennelemente angeben. Für das Spaltprodukt i gilt für die Zeit nach der Coreentnahme:

$$A_i(a, t_A) = A_{oi}(a) \cdot e^{-\lambda_i \cdot t_A} \quad (5)$$

- $A_i(a, t_A)$ = Radioaktivität des Spaltproduktes i nach Coreentnahme
 $A_{oi}(a)$ = Radioaktivität des Spaltproduktes i bei Coreentnahme
 a = Abbrand
 t_A = Abklingzeit nach Coreentnahme
 λ_i = Zerfallskonstante

Mit der in Gleichung (5) angegebenen Radioaktivität der Spaltprodukte sowie der Kenntnis der beim Zerfall auftretenden β - und γ -Energien und der Anzahl der pro Zerfall entstehenden β -Teilchen und γ -Quanten kann die Nachwärmeleistung eines abgebrannten Brennelementes berechnet werden.

$$\dot{Q} = \sum_i A_i(a, t_A) \left[\sum_j w_{\gamma i, j} \cdot E_{\gamma i, j} + \sum_k w_{\beta i, k} \cdot E_{\beta i, k} \right] \quad (6)$$

$w_{\gamma i, j}$ = Anzahl der beim Zerfall des Spaltproduktes i entstehenden γ -Quanten der Energie E_j

$E_{\gamma i, j}$ = Gamma-Energie eines beim Spaltprodukt i entstehenden γ -Quants

$w_{\beta i, k}$ = Anzahl der beim Zerfall des Spaltproduktes i emittierten β -Teilchen der Energie E_k

$E_{\beta i, k}$ = Energie eines vom Spaltprodukt i emittierten β -Teilchens

Die Größen λ_i , $E_{\gamma i}$, $E_{\beta i}$, $w_{\gamma i}$ und $w_{\beta i}$ sind Nuklideigenschaften der Spaltprodukte, die aus Tabellen entnommen werden können.

Gleichung (6) kann zusammengefaßt werden zu

$$\dot{Q} = \sum_i A_i(a, t_A) \cdot [E_{\gamma i} + E_{\beta i}] \quad (7)$$

wobei $E_{\gamma i}$ und $E_{\beta i}$ die γ - bzw. β -Energie pro Zerfall des Spaltproduktes i angeben.

Für die im wesentlichen an der Erzeugung der Nachwärme eines abgebrannten AVR-Brennelementes beteiligten Spaltprodukte sind in Tabelle 3 die Anteile der γ - und β -Strahlung sowie die gesamte Strahlungsleistung (ohne α -Strahlung), bezogen auf eine Radioaktivität von 1 Ci je Spaltprodukt, angegeben /6, 7/.

Nuklid	λ_i $\left[\frac{1}{s}\right]$	$\dot{Q}_{\beta i}$ $\left[\frac{mW}{Ci}\right]$	$\dot{Q}_{\gamma i}$ $\left[\frac{mW}{Ci}\right]$	$\dot{Q}_i = \dot{Q}_{\beta i} + \dot{Q}_{\gamma i}$ $\left[\frac{mW}{Ci}\right]$
Kr-85	2,03 E-9	1,60	3,02 E-2	1,63
Sr-89	1,54 E-7	8,64	5,38 E-4	8,64
Sr-90	7,82 E-10	1,30	8,36 E-3	1,31
Y-90	(3,01 E-6)	5,75	1,48 E-1	5,90
Y-91	1,37 E-7	9,09	2,14 E-2	9,11
Zr-95	1,22 E-7	2,32	4,30	6,62
Nb-95	2,29 E-7	0,94	4,49	5,43
Ru/Rh-103	2,05 E-7	1,30	2,84	4,14
Ru/Rh-106	2,19 E-8	8,64	1,90	10,54
Sb-125	8,14 E-9	1,51	2,54	4,05
Cs-134	1,07 E-8	1,22	9,43	10,65
Cs-137	7,32 E-10	1,62	1,84 E-2	1,64
Ba-137m	(4,53 E-3)	0	3,92	3,92
Ce-141	2,43 E-7	2,85	4,20 E-1	3,27
Ce-144	2,82 E-8	6,40 E-1	1,78 E-1	8,20 E-1
Pr-144	(6,68 E-4)	7,26	4,84 E-1	7,74
Pm-147	8,38 E-9	5,20 E-1	1,90 E-3	5,20 E-1
Eu-154	1,37 E-9	1,51	6,70	8,21

Tab. 3: STRAHLUNGSLEISTUNG DER IM WESENTLICHEN AN DER NACHWÄRME-ERZEUGUNG EINES ABGEBRANNTEN AVR-BRENNELEMENTES BETEILIGTEN SPALTPRODUKTE

Mit dem Rechenprogramm ORIGEN wurden auf diese Weise Berechnungen der Nachwärmeleistung für abgebrannte AVR-Brennelemente mit Abbränden zwischen 5 und 15 % fima sowie Abklingzeiten zwischen 150 Tagen und 3 Jahren durchgeführt. Unter Benutzung dieser Rechenergebnisse wurden die in Tab. 4 zusammengestellten Nachwärmeleistungen für AVR-Brennelemente mit Abbränden zwischen 5 und 20 % fima und Abklingzeiten bis zu 8 Jahren abgeschätzt /3/.

Abbrand [% fima]	Abklingzeit						
	150 d	1 a	2 a	3 a	4 a	6 a	8 a
	\dot{Q}_R [mW/BE]						
5	276	104	46,0	26,1	17,4	11,6	10,0
10	236	121	65,3	42,7	32,0	23,7	20,6
15	160	183	68,5	52,3	43,0	34,2	29,8
20	138	114	84,5	68,7	58,8	46,9	40,6

Tab. 4: BERECHNETE NACHWÄRMELEISTUNG ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE

In Abb. 5 sind die berechneten Nachwärmeleistungen der AVR-Brennelemente in Abhängigkeit von Abbrand und Abklingzeit dargestellt.

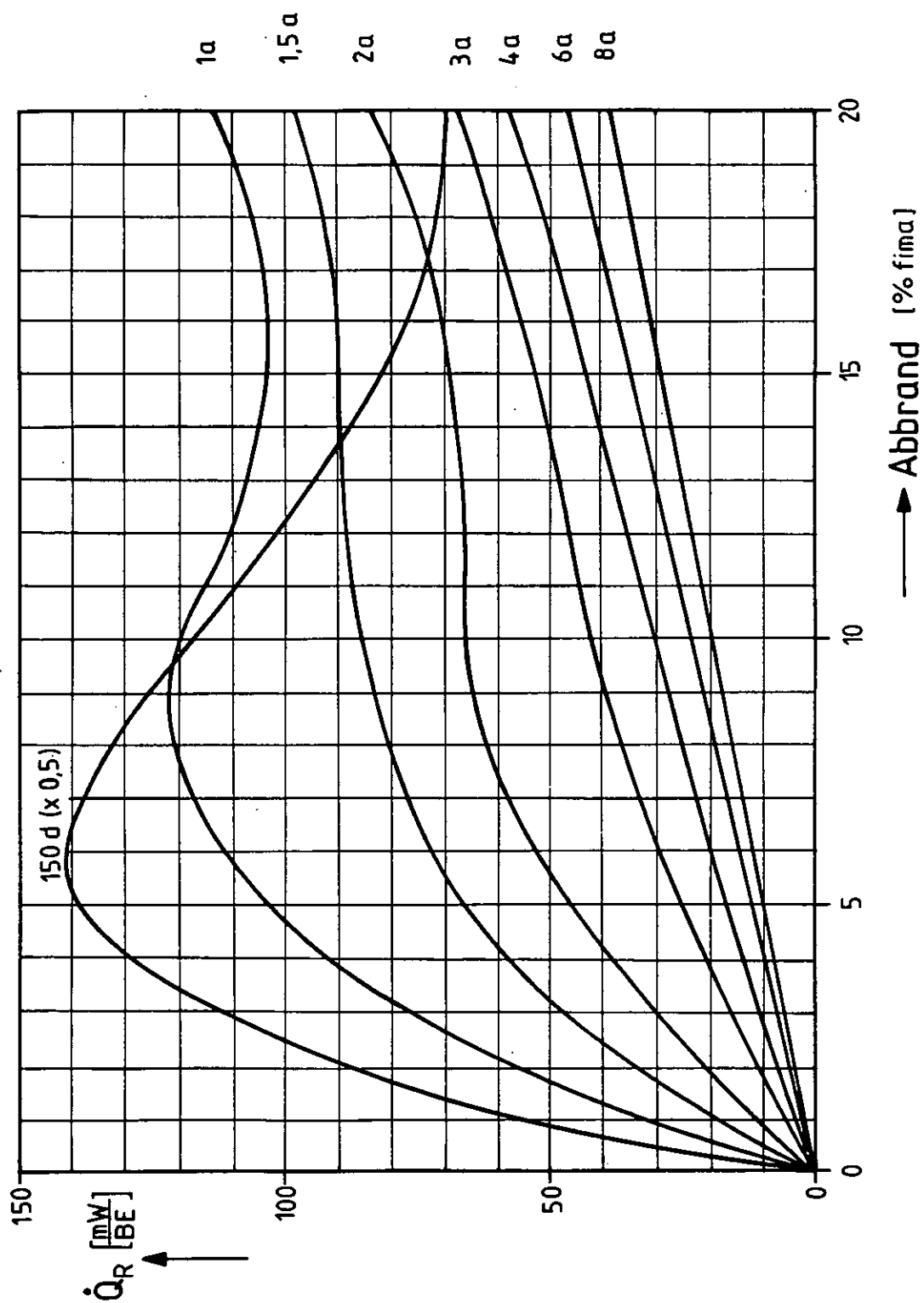


Abb. 5: NACHWÄRMELEISTUNG ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE ALS FUNKTION VON ABBRAND UND ABKLINGZEIT /3/

4. REICHWEITE DER STRAHLUNG IM AVR-BRENNELEMENT

Die bei Kernspaltungsprozessen entstehenden radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukte wandeln sich unter Aussendung von α -, β - und γ -Strahlung in stabile Kerne um. Dabei treten je nach Art und Energie der Strahlung verschiedene Wechselwirkungsprozesse zwischen Strahlung und Brennelement auf. Nur ein Teil der im Brennelement erzeugten Strahlung wird im Brennelement selbst absorbiert und in Wärme umgewandelt, während der Rest von den Brennelementen abgestrahlt und in der Umgebung absorbiert wird. Im folgenden wurde durch Abschätzung der Reichweite geprüft, ob neben der γ -Strahlung auch α - und β -Strahlung von AVR-Brennelementen emittiert wird, damit dieser Strahlungsanteil durch geeignete Messungen gegebenenfalls mit erfaßt werden konnte.

4.1 α -Strahlung

Die Emission der α -Teilchen radioaktiver Nuklide erfolgt in Gruppen, denen eine bestimmte Energie zugeordnet werden kann. Die Energien der emittierten α -Teilchen liegen in der Größenordnung von 3 bis 10 MeV. Beim Durchgang durch Materie geben α -Teilchen im wesentlichen durch zahlreiche unelastische Stöße mit den Hüll-elektronen der Atome allmählich ihre kinetische Energie ab, wobei die Atome angeregt oder ionisiert werden. Da die Masse eines α -Teilchens im Vergleich zum Elektron sehr groß ist, wird es bei Kollisionen mit Elektronen kaum gestreut. Die Strecke, nach der die α -Partikel beim Durchgang durch ein Medium ihre gesamte Energie verloren haben und durch Einfang zweier Elektronen zu einem Helium-Atom rekombiniert werden, bezeichnet man als ihre Reichweite. Wegen der einheitlichen Ausgangsenergie der einzelnen α -Gruppen und der geringen Streuung beim Durchgang durch Materie hat α -Strahlung eine ziemlich exakt angebbare Reichweite. Sie hängt ab von der Ausgangsenergie der Teilchen und der Zahl der Hüll-elektronen je Raumeinheit des durchstrahlten Mediums. Für Luft im Normalzustand gilt für den Energiebereich zwischen 4 und 7 MeV ziemlich genau /9/:

$$R_{\alpha} = 0,32 \cdot E^{3/2} \quad (R \text{ in cm, } E \text{ in MeV}) \quad (8)$$

Zur Berechnung der Reichweite in Graphit gilt angenähert:

$$(R_{\alpha} \cdot \rho)_{\text{Luft}} = (R_{\alpha} \cdot \rho)_{\text{Graphit}} \quad (9)$$

und mit $\rho_{\text{Graphit}} = 1,7 \text{ g/cm}^3$ folgt

$$R_{\alpha} = 2,43 \cdot E^{3/2} \text{ } \mu\text{m} \quad (9a)$$

Die Reichweite von α -Teilchen mit einer Energie von 6 MeV beträgt in Graphit demnach 36 μm .

Dies bedeutet, daß alle im AVR-Brennelement emittierten α -Teilchen im Brennelement selber absorbiert werden und dabei ihre kinetische Energie in Wärme umwandeln.

4.2 β -Strahlung

Die von einem radioaktiven Kern emittierte β -Strahlung weist im Gegensatz zur α -Strahlung ein kontinuierliches Energiespektrum mit einer für jeden Strahler charakteristischen Maximalenergie auf. Abb. 6 zeigt schematisch ein typisches Energiespektrum für β -Strahlung.

Diese Energieverteilung kommt daher, daß zugleich mit dem Elektron noch ein Neutrino ausgesandt wird, das einen je nach Impulsverteilung verschiedenen Anteil der Zerfallsenergie (E_{max}) mitführt. Die Emissionshäufigkeit für β -Teilchen mit der Energie E_{max} ist sehr gering. Der größte Teil der emittierten β -Strahlung besitzt eine Energie, die etwa $E_{\text{max}}/3$ entspricht. Die Maximalenergie der im AVR-Brennelement emittierten β -Strahlung beträgt 3,5 MeV (Rh-106).

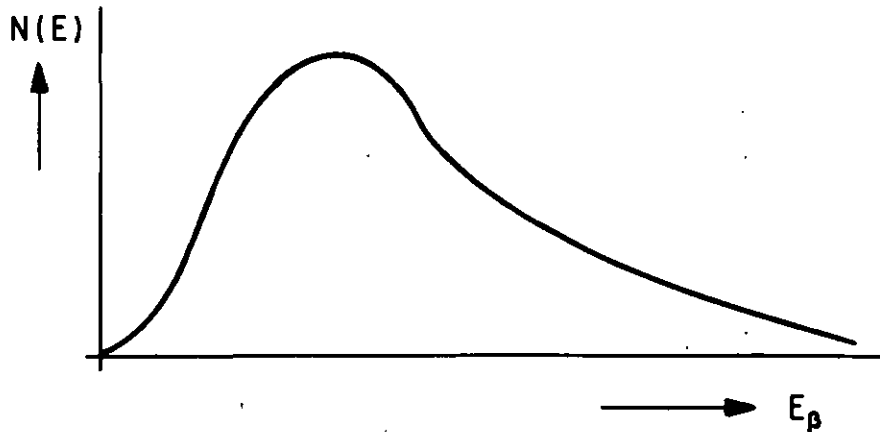


Abb. 6: ENERGIEVERTEILUNG DER ELEKTRONEN BEIM β -ZERFALL

Die Wechselwirkungen der β -Strahlung mit Materie sind wesentlich komplizierter als bei schweren geladenen Teilchen. Im Bereich kleiner Energien herrschen die Ionisationsprozesse vor, mit wachsender Energie der β -Strahlung nimmt die Energieabsorption durch Emission von Bremsstrahlung zu. Bei β -Energien kleiner 2 MeV kann jedoch der Anteil der Bremsstrahlung an der Energieabsorption vernachlässigt werden.

Wegen seiner kleinen Masse wird das β -Teilchen im Gegensatz zum α -Teilchen durch Stöße mit Atomkernen und Hüllelektronen erheblich gestreut.

Die Reichweite in Materie kann über folgende empirische Beziehungen abgeschätzt werden /9/. Es gilt:

$$R_{\beta} = \frac{A}{Z \cdot \rho} \cdot 0,481 \cdot 412 \cdot E^{1,265 - 0,0954 \ln E} \quad [\text{cm}] \quad (10)$$

$$(0,01 \text{ MeV} < E < 2,5 \text{ MeV})$$

$$R_{\beta} = \frac{A}{Z \cdot \rho} \cdot 0,481 \cdot (530 \cdot E - 106) \quad [\text{cm}] \quad (11)$$

$$(E > 2,5 \text{ MeV})$$

In beiden Gleichungen ist E in MeV und ρ in mg/cm^3 einzusetzen.

Die Reichweite eines β -Teilchens mit einer Energie von 3,5 MeV beträgt demnach 0,99 cm. Das bedeutet, daß Spaltprodukte, die β -Teilchen dieser Energie aussenden und sich weniger als 0,99 cm von der Oberfläche des Brennelementes befinden, bei radialer Abstrahlung β -Teilchen aus dem Brennelement emittieren können. Alle β -Teilchen, die eine Energie $\leq 1,9$ MeV besitzen, werden von der brennstofffreien Zone auch bei radialer Abstrahlung zurückgehalten. Die Mehrzahl der an der Nachwärmeerzeugung beteiligten Spaltprodukte der AVR-Brennelemente emittieren β -Teilchen, die diese Energiebedingung erfüllen, so daß davon ausgegangen werden kann, daß nur ein kleiner Teil der β -Strahlung von AVR-Brennelementen abgestrahlt wird.

5. KALORIMETRISCHE MESSUNG DER IM Brennelement ABSORBIERTEN ENERGIE

5.1 Auswahl und Beschreibung des Kalorimeters

Für die Messung der Nachwärmeleistung, die an einzelnen Brennelementen durchgeführt wurde, waren zwei verschiedene Meßverfahren erforderlich, weil die im Brennelement in Wärme umgewandelte Strahlung sowie der in die Umgebung emittierte Strahlungsanteil zu erfassen waren.

Dabei bot sich für die Bestimmung der im Brennelement absorbierten Wärme die Anwendung eines Kalorimeters an, das insbesondere die nachfolgenden Anforderungen erfüllen sollte:

1. Erzeugung großer Temperaturdifferenzen, um bei den geringen zu messenden Wärmemengen den Temperaturmeßfehler möglichst gering halten zu können.
2. Geringer apparativer Aufwand und einfache Handhabung, damit die Apparatur in einer HEISSEN ZELLE mit Manipulatoren fernbedient werden konnte.

Zur Auswahl standen die folgenden Kalorimeter, deren Meßprinzip kurz erläutert wird /13, 14, 15/:

- Flüssigkeitskalorimeter
- Isothermes Kalorimeter
- Adiabates Kalorimeter

Desweiteren wird auf die Vor- und Nachteile bei der Verwendung für die vorliegende Meßaufgabe eingegangen.

Bei Flüssigkeitskalorimetern handelt es sich um ein thermisch gut isoliertes Flüssigkeitsbad, das im wesentlichen aus einem doppelwandigen Glasbehälter besteht, dessen Zwischenraum evakuiert ist (Abb. 7). Die Innenfläche ist meist verkupfert oder versilbert. Als Kalorimeterflüssigkeit dient gewöhnliches Wasser.

Um für eine gleichmäßige Temperaturverteilung zu sorgen, wird die Kalorimeterflüssigkeit mit einem Rührer durchmischt.

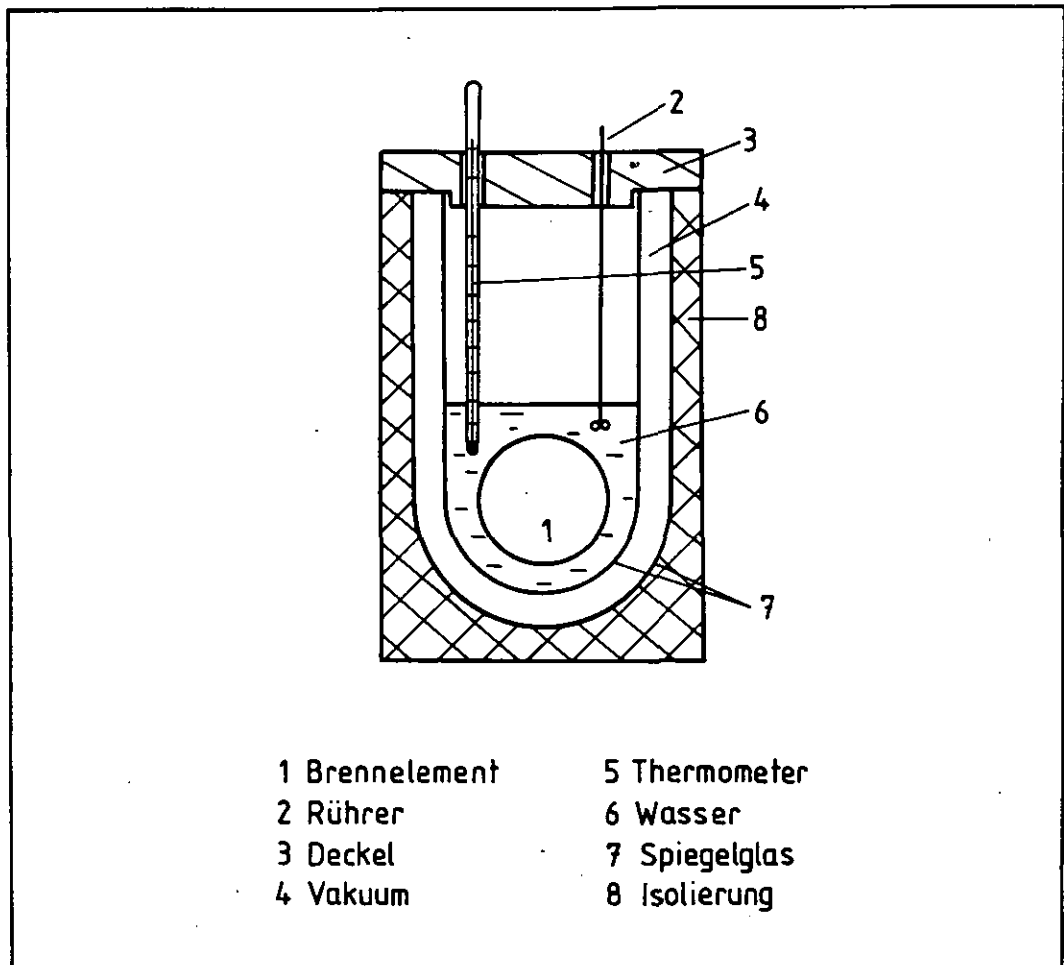


Abb. 7: FLOSSIGKEITSKALORIMETER

Unter Berücksichtigung des Wärmeverlustes kann bei Kenntnis der Wärmekapazität und Temperaturerhöhung des Flüssigkeitsbades die gesuchte Wärmemenge berechnet werden. Die Nachwärmeleistung eines AVR-Brennelementes könnte sich bei Verwendung des Flüssigkeitskalorimeters über folgende Gleichung ermitteln lassen:

$$\dot{Q} = \frac{(m_W \cdot c_W + m_{BE} \cdot c_{BE} + m_{TM} \cdot c_{TM} + m_G \cdot c_G + m_R \cdot c_R) \cdot (\vartheta_2 - \vartheta_1)}{\Delta t} + \dot{Q}_V + \dot{Q}_{Ye} - \dot{Q}_R \quad (12)$$

\dot{Q}	=	Nachwärmeleistung des Brennelementes
\dot{Q}_V	=	Wärmeverlust
$\dot{Q}_{\gamma e}$	=	Aus dem Kalorimeter emittierte γ -Strahlung
\dot{Q}_R	=	Durch den Rührer zugeführte Leistung
$m_W, m_{BE}, m_G, m_{TM}, m_R$	=	Masse von Wasser, Brennelement, Kalorimetergefäß, Thermometer und Rührer
$c_W, c_{BE}, c_G, c_{TM}, c_R$	=	Spezifische Wärmekapazitäten
ϑ_1	=	Temperatur zu Beginn der Messung
ϑ_2	=	Temperatur am Ende der Messung
Δt	=	Meßzeit

Trotz des geringen apparativen Aufwandes hat das Flüssigkeitskalorimeter eine Reihe von Fehlerquellen, die sich erheblich auf die Meßgenauigkeit auswirken. Insbesondere die Bestimmung der Wärmekapazität von Gefäß und Thermometer sowie der Wärmeverlust sind problematisch.

Im vorliegenden Fall können die geringen zu messenden Wärmemengen wegen der hohen Wärmekapazität des Wassers nur kleine Temperaturerhöhungen hervorrufen, was bei der begrenzten Temperaturmeßgenauigkeit zu großen Meßfehlern führt. Weitere Probleme bestehen bei der Bestimmung der nicht im Kalorimeter absorbierten γ -Strahlung und bei dem Konstanthalten der Wassermenge, die beim Brennelementwechsel durch das am Brennelement mitgeführte Wasser verändert wird.

Isotherme Kalorimeter werden zur Messung isotherm verlaufender Phasenübergänge, wie Schmelzen, Verdampfen oder Kondensieren herangezogen und die Wärmemenge wird aus der Menge der geschmolzenen, verdampften bzw. kondensierten Substanz berechnet.

Das wesentliche Merkmal der isothermen Kalorimetrie ist jedoch, daß im stationären Zustand gemessen wird und daß die Temperaturdifferenz zwischen Absorber und Kalorimetergefäß für $t \rightarrow \infty$ konstant ist, wodurch ein gleichmäßiger Wärmestrom zwischen Absorber und Kalorimeter ausgetauscht wird, der sich berechnen läßt. Ein Beispiel dafür ist das in Abb. 8 dargestellte Kalorimeter. Es besteht im wesentlichen aus einer Isolierung, die das Brennelement in Form zweier Halbschalen umgibt, die selbst noch einmal von einem dünnwandigen Kupfermantel umgeben sind.

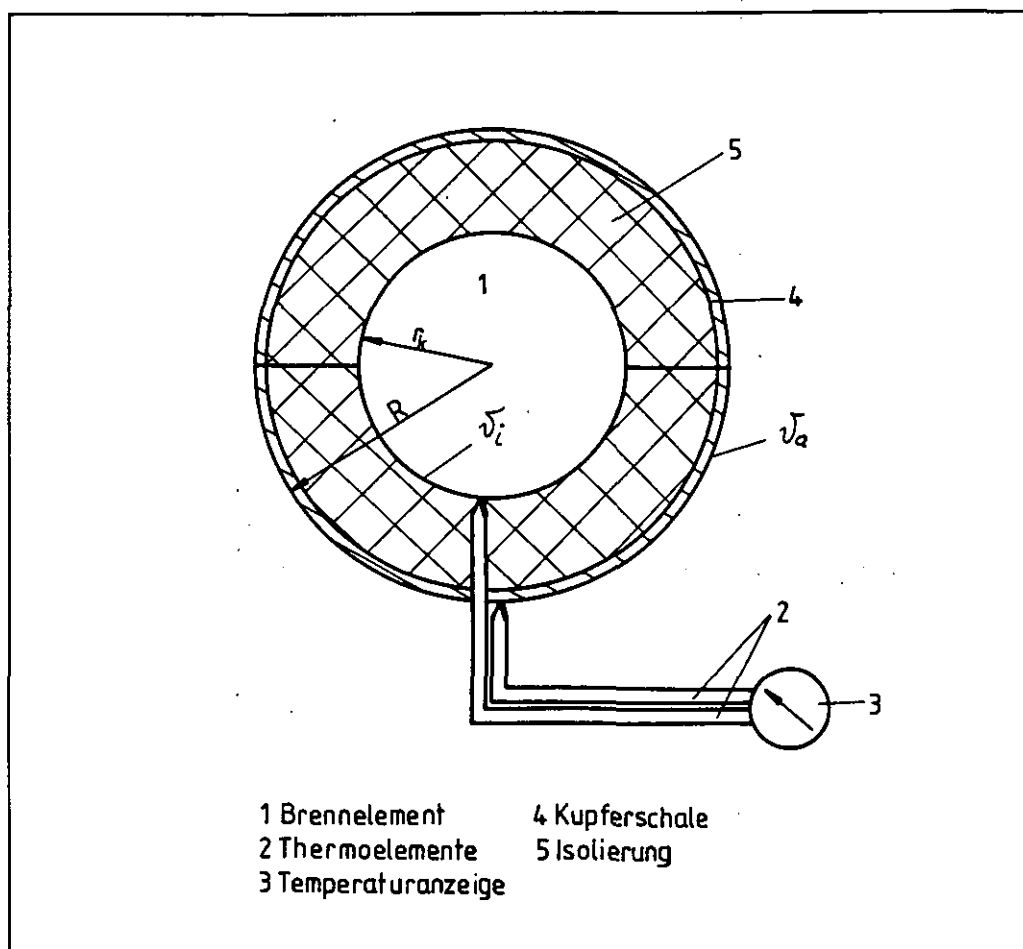


Abb. 8: ISOTHERMES KALORIMETER

Die Isolierung bewirkt, je nach Güte, eine Vergrößerung des Wärmewiderstandes, die im Brennelement solange zur Temperaturerhöhung führt, bis durch die Gleichgewichtstemperaturdifferenz $\Delta \vartheta = \vartheta_i - \vartheta_a$ die im Brennelement erzeugte Wärme abgeführt werden kann. Um eine stationäre Temperaturdifferenz erreichen zu können, muß ϑ_u konstant sein. Die Kupferschale dient lediglich der Befestigung des zur Temperaturmessung verwendeten Thermoelementes, um einen guten Wärmeübergang am Thermoelement zu gewährleisten.

Im Gleichgewichtszustand entspricht die im Brennelement erzeugte Nachwärmeleistung gerade der über die Isolierung abgeführten Wärme.

Es gilt:

$$\dot{Q} = \lambda \cdot 4\pi \cdot \frac{\vartheta_i - \vartheta_a}{\frac{1}{r_k} - \frac{1}{R}} + \dot{Q}_{\gamma e} \quad (13)$$

\dot{Q} = Nachwärmeleistung des Brennelementes

$\dot{Q}_{\gamma e}$ = Aus dem Kalorimeter emittierte γ -Strahlung

ϑ_i = Oberflächentemperatur des Brennelementes

ϑ_a = Oberflächentemperatur der Kupferschale

λ = Wärmeleitfähigkeit

R = Halbmesser der Kupferschale

r_k = Halbmesser des Brennelementes

Das Besondere an diesem Meßprinzip ist darin zu sehen, daß die Nachwärmeleistung unabhängig von den physikalischen Eigenschaften der einzelnen, zu messenden Brennelemente bestimmt werden kann. Dies ist von Vorteil, weil die Wärmekapazität verschiedener Brennelementtypen geringfügig voneinander abweicht und die Ermittlung der Wärmekapazität

jedes einzelnen Brennelementes zu aufwendig ist. Es genügt hier die einmalige Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit und der Abmessungen von Isolierung und Kupferschale.

Doch diese Anordnung hat auch Nachteile, die sich aus der praktischen Durchführbarkeit ergeben. Isoliermaterialien sind sehr porös und haben nur geringe mechanische Stabilität. Es war daher zu befürchten, daß die Isolierung im Laufe der Zeit zusammengedrückt würde, wodurch ein einseitiger Wärmeübergang zwischen Kugel und Isolierung entstanden wäre, der zu unsymmetrischen Temperaturverläufen in der Kugel geführt hätte. Ein weiterer Nachteil war, daß die Fertigung der Kugelschalen aufwendig ist.

Bei adiabatischen Kalorimetern wird die Temperatur des Gefäßes möglichst trägheitslos der Temperatur des Absorbers nachgeregelt, wodurch im Idealfall während des gesamten Versuches keine Wärmeverluste auftreten. Der einem Absorber zugeführte Wärmestrom wird berechnet mit:

$$\frac{\Delta Q}{\Delta t} = m \cdot c \cdot (T_2 - T_1) \quad (14)$$

ΔQ = zugeführte Wärme

Δt = Dauer der Wärmezufuhr

m = Masse des Absorbers

c = Spezifische Wärme des Absorbers

$T_2 - T_1$ = Temperaturerhöhung des Absorbers

Ein großer Nachteil bei diesem Verfahren ist der apparative Aufwand, der für die Herstellung und Kontrolle der Adiabase erforderlich ist.

Die zusammenfassende Beurteilung der Kalorimeter zeigt, daß die genannten Forderungen von keinem gleichzeitig erfüllt werden können.

Das Flüssigkeitskalorimeter schied aufgrund der ersten Forderung aus, weil der Temperatureffekt wegen der geringen Wärmeproduktion der Brennelemente und der hohen Wärmekapazität des Wassers zu gering gewesen wäre. Die zweite Forderung führte dazu, daß ein adiabatisches Kalorimeter wegen seines großen apparativen Aufwandes nicht verwendet werden konnte. Schließlich blieb das oben beschriebene isotherme Kalorimeter, das die erste Forderung gut erfüllte. Es war jedoch zu befürchten, daß die Isolierung die vorgesehenen Messungen wegen der geringen mechanischen Stabilität bei Fernbedienung durch Manipulatoren nicht überstehen würde.

In Anlehnung an das beschriebene isotherme Kalorimeter wurde daher ein Gefäß gebaut, bei dem die Styroporisolierung durch Vakuum ersetzt wurde.

Das in Abb. 9 schematisch dargestellte Kalorimeter besteht aus einem zylindrischen Messingbehälter von 200 mm Durchmesser, der horizontal geteilt ist. In seinem kugelförmigen Innenraum wird das Brennelement während der Messung auf drei Kunststoffspitzen gelagert. Für die Temperaturmessung von Behälter und Brennelement wurden Thermoelemente verwendet. Am Unterteil des Gefäßes ist ein T-Stück angeflanscht, das über einen Schlauch die Verbindung zu den Vakuumpumpen herstellt und mit einem vakuumdichten Flansch, der mit Kunstharz ausgegossen ist, für die Durchführung des Thermoelements vom Brennelement sorgt. Die Innenfläche des Kalorimeters ist hochglanzpoliert, um die Wärmeverluste durch Wärmestrahlung möglichst gering zu halten. Zwischen den beiden Gefäßhälften dient ein O-Ring als Dichtung.

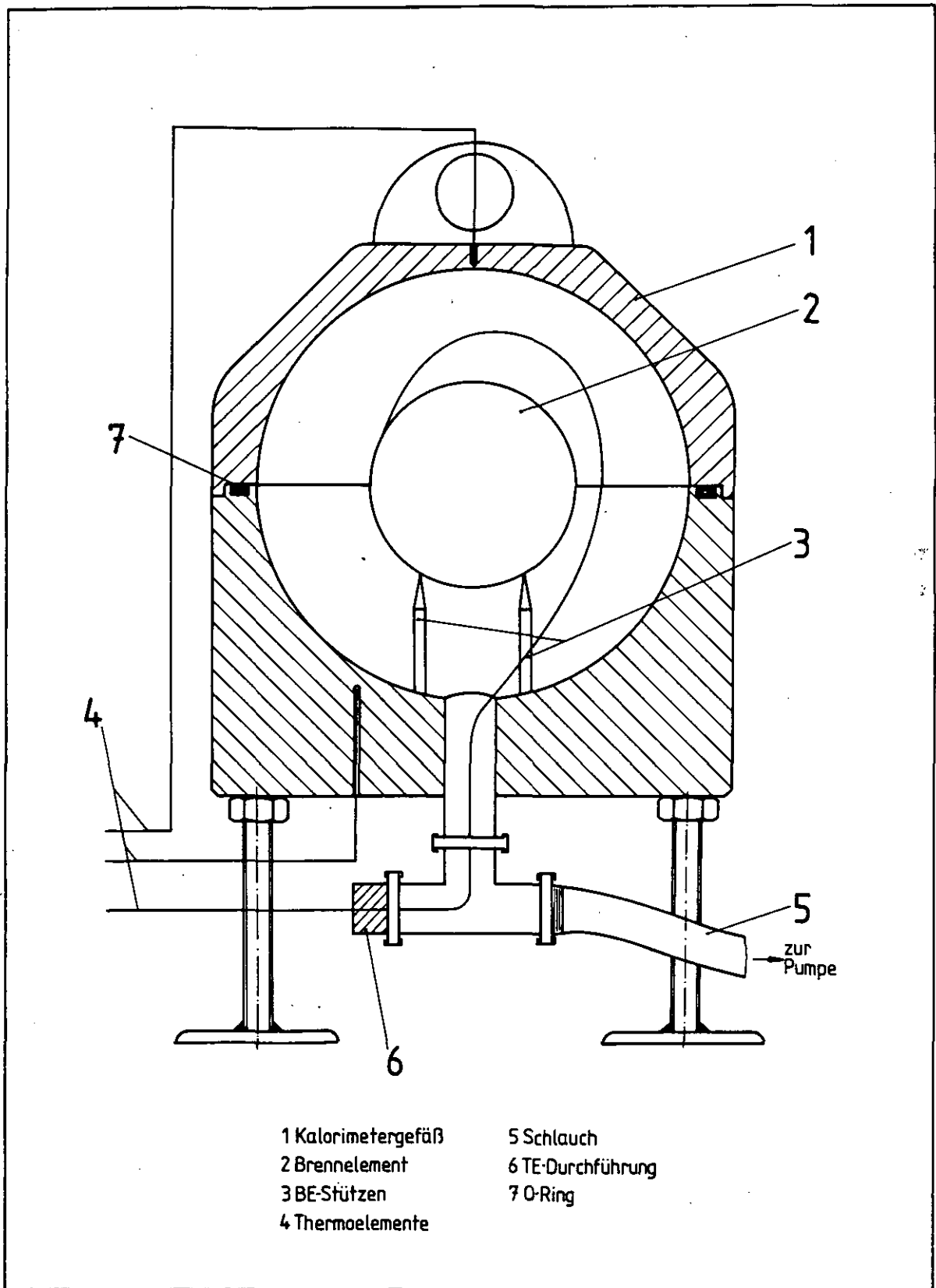


Abb. 9: KALORIMETER ZUR MESSUNG DER IN EINEM ABGEBRANNTEN AVR-BRENNELEMENT ABSORBIERTEN NACHWÄRME (LÄNGSSCHNITT)

Die Wärmebilanz für ein im evakuierten Kalorimeter befindliches Brennelement führt zur Bestimmungsgleichung der dort absorbierten und in Wärme umgewandelten Strahlungsenergie /16/:

$$\frac{d\vartheta_{BE}}{dt} \cdot m_{BE} \cdot c_{BE} = \dot{Q}_a - K_1 \cdot (\vartheta_{BE} - \vartheta_G) \quad (15)$$

$$\text{mit } K_1 \cdot (\vartheta_{BE} - \vartheta_G) = \dot{Q}_v = \dot{Q}_{Str} + \dot{Q}_L \quad (16)$$

ϑ_{BE}	=	Brennelementtemperatur
m_{BE}	=	Brennelementmasse
c_{BE}	=	Spezifische Wärme des Brennelementes
\dot{Q}_a	=	Im Brennelement absorbierte Teil der Zerfallswärme
\dot{Q}_v	=	Wärmeverlust durch Wärmestrahlung und -leitung
ϑ_G	=	Gefäßtemperatur
K_1	=	Konstante

Der größte Teil, nämlich 70 % des Wärmeverlustes wird durch Wärmestrahlung, der Rest durch Leitung über die Kunststoffspitzen, dem Thermoelement und der restlichen Luft im Kalorimeter vom Brennelement an das Kalorimetergefäß übertragen.

Die Integration von Gl. (15) liefert in Gl. (17) den zeitlichen Temperaturanstieg im Brennelement unter der Voraussetzung, daß \dot{T}_G konstant ist.

$$T_{BE} = T_G + \frac{\dot{Q}_a}{K_1} \cdot (1 - e^{-\frac{K_1}{m_{BE} \cdot c_{BE}} \cdot t}) \quad (17)$$

mit $K_{BE} = \frac{K_1}{m_{BE} \cdot c_{BE}}$ folgt

$$T_{BE} = T_G + \frac{\dot{Q}_a}{K_{BE} \cdot m_{BE} \cdot c_{BE}} \cdot (1 - e^{-K_{BE} \cdot t}) \quad (18)$$

Aus Gl. (18) kann für $t \rightarrow \infty$ die Bestimmungsgleichung für die im Brennelement absorbierte Nachwärme direkt ermittelt werden. Es gilt:

$$\dot{Q}_a = m_{BE} \cdot c_{BE} \cdot K_{BE} \cdot (T_{BE \infty} - T_G) \quad (19)$$

5.2 Versuchsaufbau

Der Aufbau des Versuchszustandes zur kalorimetrischen Messung ist in Abb. 10 als Blockschaltbild dargestellt.

Das Kalorimeter war in einer HEISSEN ZELLE installiert und über Durchführungen in der Betonabschirmung mit den erforderlichen Meß- und Registriergeräten verbunden.

Zur Erzeugung des Vakuums diente ein auf der Zelle installierter Hochvakuum-Pumpstand, der im wesentlichen aus Vorpumpe, Öl-Diffusionspumpe und dazugehörigen Meß- und Regeleinrichtungen bestand.

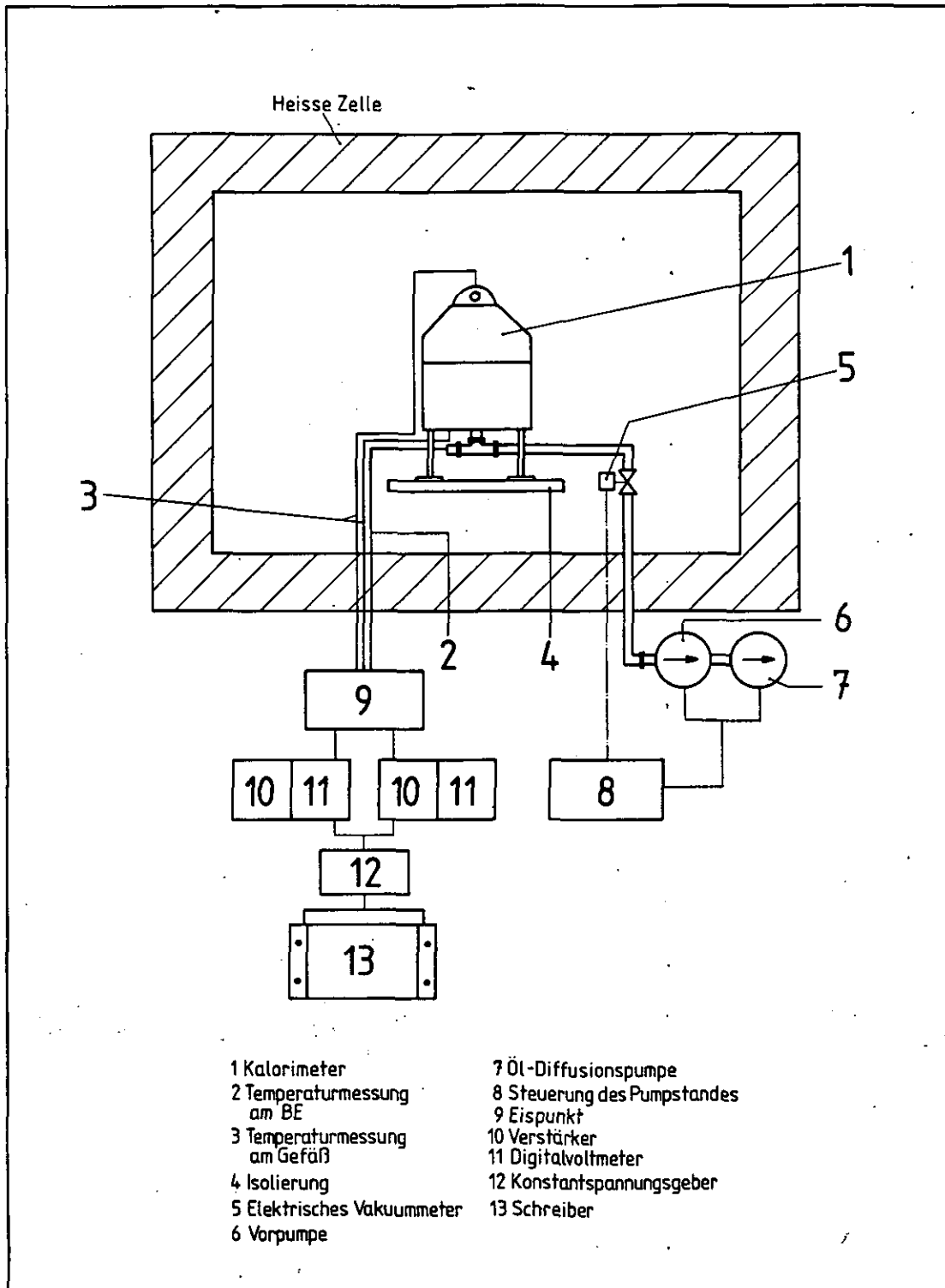


Abb. 10: VERSUCHSANORDNUNG ZUR MESSUNG DER IM Brennelement ABSORBIERTEN ZERFALLSWÄRME

Der Pumpstand ist in der Lage, ein Vakuum von 10^{-6} mbar zu erzeugen. Bei den vorliegenden Messungen war das Vakuum jedoch wegen der langen Leitungen, Durchführungen und Ventile nicht besser als 10^{-4} mbar. Zur Messung des Druckes am Kalorimeter diente ein elektrisches Vakuummeter.

Die Bezugstemperatur wurde mit einem Eispunkt-Thermostaten hergestellt, der 0°C mit einer Genauigkeit von $\pm 0,01\text{ K}$ bei maximal 40°C Umgebungstemperatur halten konnte. Die von den Thermoelementen gelieferten Thermospannungen wurden von KNICK-Gleichstrom-Verstärkern um den Faktor 10^3 verstärkt und mit einem Zweipunktschreiber aufgezeichnet. Zur Kontrolle der verstärkten Spannungen dienten zwei Digital-Voltmeter mit einer Auflösung von 1 mV.

5.3 Durchführung von Messungen

5.3.1 Temperaturmessung

An die Thermometer zur Temperaturmessung im Brennelement und am Gefäß wurden folgende Anforderungen gestellt /19/:

1. Die Thermometer sollten kurze Ansprechzeiten haben, um der Temperaturänderung im Brennelement möglichst trägheitslos folgen zu können.
2. Die Thermometer mußten eine geringe Wärmekapazität haben und schlecht wärmeleitend sein, damit die Temperaturverteilung vor allem im Brennelement nicht verändert wird.
3. Das Thermometersignal sollte möglichst groß sein.
4. Die Anzeige sollte möglichst eine lineare Funktion der Temperatur sein.
5. Die Thermometer sollten mechanisch unempfindlich und möglichst strahlenresistent sein.

Bei einem Vergleich alternativer Thermometer erschienen Mantel-Thermoelemente für die vorgesehene Verwendung am besten geeignet /17, 18/. Vor allem wegen ihrer unkomplizierten Handhabung und der mechanischen Unempfindlichkeit, die wegen der Fernbedienung mit Manipulatoren unerlässlich war, wurden Mantel-Thermoelemente mit NiCr/Ni-Thermopaar verwendet. Ihr Drahtdurchmesser betrug 0,15 mm, der Manteldurchmesser 1,0 mm.

Bei der Auswahl der Meßstelle am Brennelement mußten einerseits die Eigenschaften der Brennelemente berücksichtigt werden, andererseits sollte an der Meßstelle ein optimaler Wärmeübergang auf das Thermoelement gewährleistet sein.

Die für die Messungen ausgewählten, gepreßten AVR-Brennelementkugeln bestehen aus dem sogenannten Brennstoffkern mit einem \varnothing von 50 mm, der, in einer Graphitmatrix eingebettet, die beschichteten Brennstoffpartikel enthält (Abb. 11). Der Brennstoffkern selber wird von einer 5 mm starken brennstofffreien Schale aus der gleichen Graphitmatrix umgeben.

Um das Anbohren der Brennstoffkerne wegen der damit verbundenen Kontamination der HEISSEN ZELLE zu vermeiden, wurden die Temperaturen der Brennelemente in der 5 mm dicken, brennstofffreien Schale gemessen. Dazu wurde tangential zur Brennelementoberfläche eine ca. 10 mm tiefe Bohrung mit einem Durchmesser von 1,5 mm angebracht, in die das Thermoelement fernbedient eingesteckt werden mußte.

Dafür wurde das Thermoelement so gebogen, daß es sich von selbst mit Hilfe seiner Eigenspannung in die Bohrung hineindrückte, wenn es mit dem Manipulator über die trichterförmige Öffnung geführt wurde. Der so hergestellte Kontakt zwischen Brennelement und Thermoelement sorgte für guten Wärmeübergang.

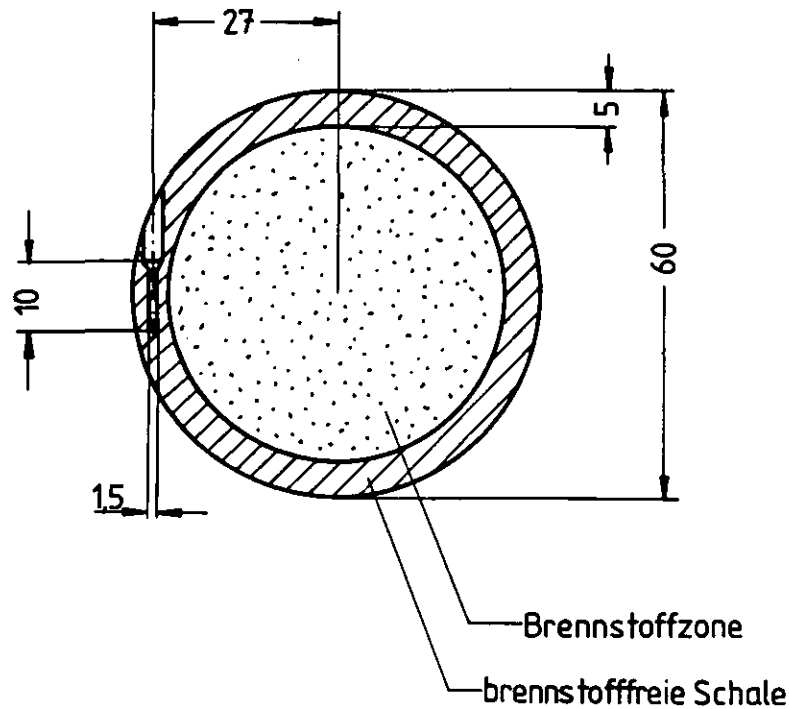


Abb. 11: SCHNITT DURCH EIN AVR-BRENNELEMENT MIT BOHRUNG ZUR AUFNAHME EINES THERMOELEMENTES

Die im Brennelement erzeugte Wärme bildet ein radiales Temperaturprofil aus, das für den Gleichgewichtszustand durch Gl. (20) beschrieben wird.

$$\vartheta(r) = \vartheta_o + \frac{\dot{Q}_a}{8 \cdot \pi \cdot R \cdot \lambda_{BE}} \cdot \left(1 - \left(\frac{r}{R}\right)^2\right) \quad (20)$$

$\vartheta(r)$ = Radiale Temperaturverteilung im Brennelement

ϑ_o = Oberflächentemperatur des Brennelementes

\dot{Q}_a = Im Brennelement absorbierte Wärme

λ_{BE} = Wärmeleitfähigkeit im Brennelement

R = Brennelement-Halbmesser

Eine Abschätzung der maximalen Temperaturdifferenzen zwischen Kugelmittle und Kugeloberfläche ergab bei einer absorbierten Strahlungswärme von 200 mW pro Brennelement einen Wert von $\Delta \mathcal{T} = 2,64 \cdot 10^{-2}$ K, wenn man für das Brennelement eine Wärmeleitfähigkeit von $\lambda_{BE} = 10$ W/mK zugrundelegt.

Da bei keinem der für die Messungen ausgewählten Brennelemente die absorbierte Wärme größer war und die angestrebte Temperaturmeßgenauigkeit $\pm 0,1$ K betrug, konnte auf die Ermittlung der mittleren Temperatur der einzelnen Brennelemente verzichtet werden. Die Auswertung der Messungen erfolgte daher mit den in der brennstofffreien Schale gemessenen Temperaturen.

Die Temperatur des Kalorimetergefäßes wurde an zwei Stellen gemessen.

Alle Thermoelemente wurden einschließlich den zur Temperaturmeßeinrichtung gehörenden Geräten geeicht. Als Vergleichsthermometer wurde ein Platin-Widerstandsthermometer verwendet, das die Messung der absoluten Temperatur mit einer Genauigkeit von $\pm 0,01$ K erlaubt.

Für das Thermoelement zur Temperaturmessung am Brennelement lieferte die Eichung den folgenden Zusammenhang zwischen Temperatur und gemessener Thermospannung.

$$\mathcal{T}_{BE} = \mathcal{T}_{0BE} + \frac{U(\mathcal{T}_{BE}) - U_{0BE}}{a_{BE}} \quad (21)$$

$$\text{mit } \mathcal{T}_{0BE} = 20,27^{\circ} \text{ C}$$

$$U_{0BE} = 814 \mu\text{V}$$

$$a_{BE} = 40,762 \frac{\mu\text{V}}{\text{K}}$$

Entsprechend gilt für die Thermoelemente zur Messung der Temperatur des Kalorimeters

$$\mathcal{T}_G = \mathcal{T}_{o_G} + \frac{U(\mathcal{T}_G) - U_{o_G}}{a_G} \quad (22)$$

$$\text{mit } \mathcal{T}_{o_G} = 20,27 \text{ }^{\circ}\text{C}$$

$$U_{o_G} = 814 \text{ } \mu\text{V}$$

$$a_G = 40,566 \frac{\mu\text{V}}{\text{K}}$$

5.3.2 Bestimmung der Wärmekapazität einer Graphitkugel

Die Ermittlung der Wärmekapazität jedes einzelnen Brennelementes war wegen des dafür notwendigen Aufwandes nicht möglich. Als Ersatz wurde daher mit dem für die Nachwärmemessungen vorgesehenen Kalorimeter die Wärmekapazität einer gepreßten Graphitkugel gemessen, die mit einem elektrischen Widerstand beheizt wurde (Abb. 12).

Die Werkstoffspezifikation der Graphitkugel entspricht etwa der gepreßter AVR-Brennelemente.

Zur Messung und Registrierung der Kugel- und Gefäßtemperaturen sowie der Evakuierung des Kalorimeters wurden die unter Punkt 5.2 beschriebenen Geräte eingesetzt. Zusätzlich wurden Strom und Widerstand zur Ermittlung der zugeführten Leistung der elektrischen Heizung gemessen.

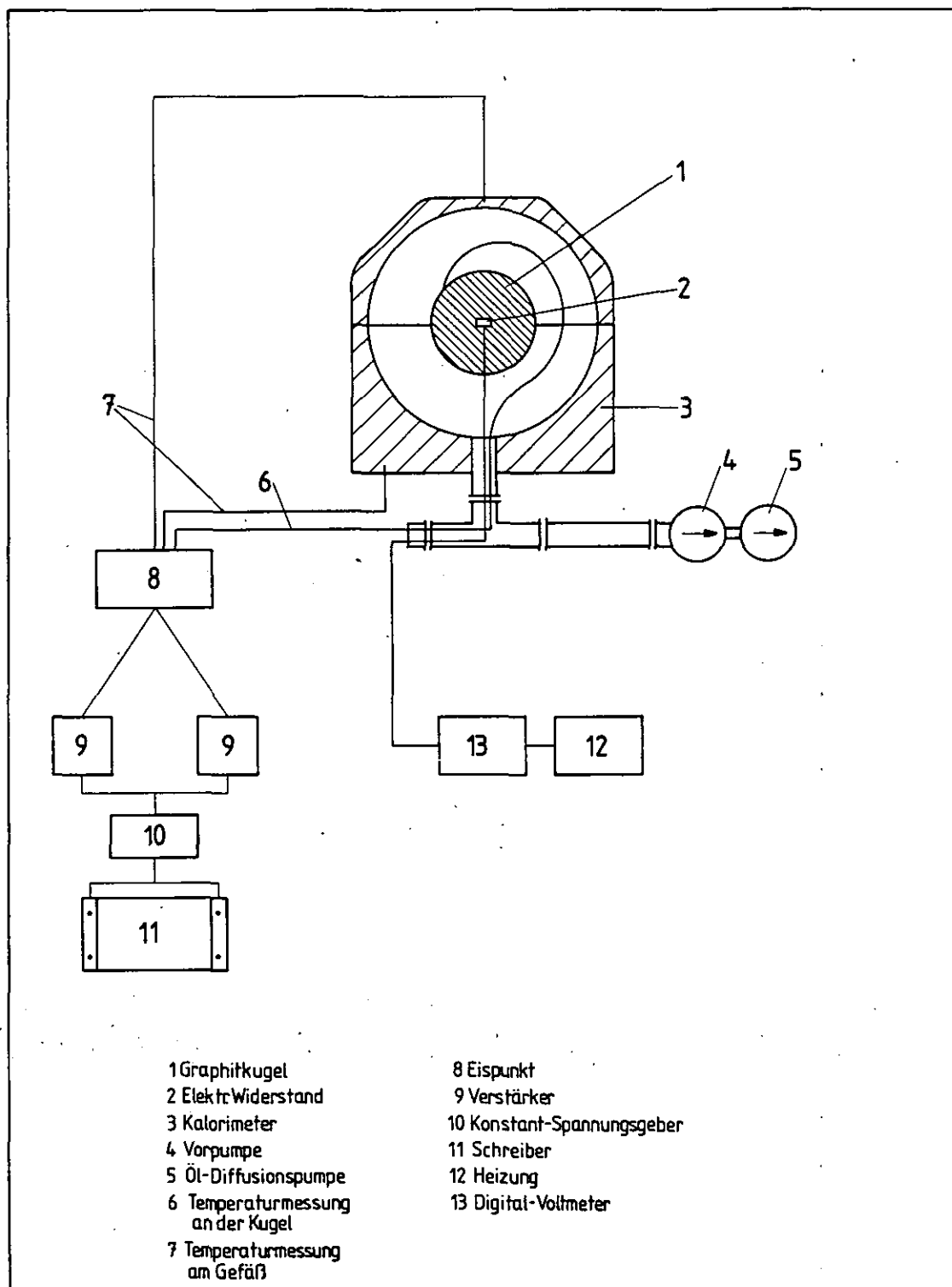


Abb. 12: VERSUCHSANORDNUNG ZUR MESSUNG DER WÄRMEKAPAZITÄT EINER GRAPHITKUGEL

Nach Gl. (23) erhält man für die Wärmekapazität der Kugel:

$$c_K = \frac{\dot{Q}_{el}}{m_K \cdot K_K \cdot (\vartheta_{K_\infty} - \vartheta_G)} \quad (23)$$

c_K = Wärmekapazität der Graphitkugel

\dot{Q}_{el} = Elektrische Heizleistung

m_K = Masse der Graphitkugel = 209,62 g

$\vartheta_{K_\infty} - \vartheta_G$ = Gleichgewichtstemperaturdifferenz

K_K = Zeitkonstante

Die Zeitkonstante wurde mit Gl. (27) ermittelt. Aus vier mit verschiedenen Heizleistungen durchgeführten Messungen ergab sich für die gepreßte Graphitkugel eine spezifische Wärmekapazität von

$$c_K = 0,794 \pm 0,02 \frac{\text{KJ}}{\text{kg} \cdot \text{K}}$$

Dieser Wert wurde bei der Auswertung der kalorimetrischen Messungen für die spezifische Wärmekapazität der Brennelemente zugrundegelegt.

5.3.3 Ermittlung der Zeitkonstante

Die Zeitkonstante für den Temperaturanstieg des Brennelementes während der Messung im Kalorimeter wurde mit Hilfe der vom Schreiber aufgezeichneten zeitabhängigen Temperaturverläufe ermittelt.

Aus Gl. (18) folgt

$$\text{mit } \frac{\dot{Q}_a}{K_{BE} + m_{BE} \cdot c_{BE}} = \mathcal{T}_{BE_\infty} - \mathcal{T}_G \quad (24)$$

für die Zeitkonstante

$$K_{BE} = - \frac{\ln \left(1 - \frac{\mathcal{T}_{BE} - \mathcal{T}_G}{\mathcal{T}_{BE_\infty} - \mathcal{T}_G} \right)}{t} \quad (25)$$

Für die Temperaturdifferenzen $\mathcal{T}_{BE} - \mathcal{T}_G$ und $\mathcal{T}_{BE_\infty} - \mathcal{T}_G$ wurden von der Aufzeichnung des Schreibers die zugehörigen Thermospannungen mit einer Auflösung von $2 \mu V$ entnommen und mit den Gleichungen (21) und (22) umgerechnet.

Es gilt mit $\mathcal{T}_{0BE} = \mathcal{T}_{0G}$ und $U_{0BE} = U_{0G} = U_0$ für

$$\mathcal{T}_{BE} - \mathcal{T}_G = \frac{U(\mathcal{T}_{BE}) - U(\mathcal{T}_G) \frac{a_{BE}}{a_G} + A}{a_{BE}} \quad (26)$$

$$\mathcal{T}_{BE_\infty} - \mathcal{T}_G = \frac{U(\mathcal{T}_{BE_\infty}) - U(\mathcal{T}_G) \frac{a_{BE}}{a_G} + A}{a_{BE}} \quad (26a)$$

$$\text{mit } A = U_0 \left(\frac{a_{BE}}{a_G} - 1 \right) = 3,9 \mu V$$

$$\frac{a_{BE}}{a_G} = 1,00483 = a$$

Einsetzen der Gleichungen (26) und (25a) in Gl. (25) ergibt:

$$K_{BE} = - \frac{\ln \left(1 - \frac{U(\vartheta_{BE}) - U(\vartheta_G) \cdot a + A}{U(\vartheta_{BE_\infty}) - U(\vartheta_G) \cdot a + A} \right)}{t} \quad (27)$$

Die Funktion

$$\ln \left(1 - \frac{U(\vartheta_{BE}) - U(\vartheta_G) \cdot a + A}{U(\vartheta_{BE_\infty}) - U(\vartheta_G) \cdot a + A} \right)$$

wurde für jeweils um 10 min fortschreitende Zeitpunkte gegen t aufgetragen und K_{BE} als Steigung der so gebildeten Geraden grafisch ermittelt (Tab. 5).

5.4 Auswertung der kalorimetrischen Messungen

Insgesamt wurden an 17 AVR-Brennelementen vom Typ G0, GK und UCC kalorimetrische Messungen durchgeführt. Die Zeiten zwischen Messung und Entnahme aus dem Reaktor betrugen zwischen 164 und 1687 Tagen. Die Abbrände lagen im Bereich von 4,1 und 16,4 % fima (Tab. 5).

Die Temperatur in der HEISSEN ZELLE sowie die Gefäßtemperatur des Kalorimeters konnten während der Messungen gut konstant gehalten werden. Wegen der hohen Wärmekapazität des Kalorimetergefäßes traten keine kurzzeitigen Temperaturänderungen auf. Im ungünstigsten Fall betrug der Temperaturgang des Gefäßes 0,05 K/h. Bei 80 % der Messungen waren die Temperaturänderungen geringer als 0,02 K/h.

Die unter diesen Bedingungen gemessenen, zeitabhängigen Temperaturverläufe wurden mit Gl. (19) ausgewertet.

Ausgehend von:

$$\dot{Q}_a = m_{BE} \cdot c_{BE} \cdot K_{BE} \cdot (\mathcal{V}_{BE} - \mathcal{V}_G)$$

folgt mit Gl. (26a) für die im Brennelement absorbierte Wärme als Funktion der für $t \rightarrow \infty$ gemessenen Thermospannungen:

$$\dot{Q}_a = m_{BE} \cdot c_{BE} \cdot K_{BE} \cdot \frac{U(\mathcal{V}_{BE_\infty}) - U(\mathcal{V}_G) \cdot \frac{a_{BE}}{a_G} + A}{a_{BE}} \quad (28)$$

\dot{Q}_a = im Brennelement absorbierte und in Wärme umgewandelte Strahlungsenergie

m_{BE} = Masse der Brennelemente (Tab. 5)

c_{BE} = $0,794 \frac{\text{KJ}}{\text{kg} \cdot \text{K}}$

K_{BE} = Zeitkonstante für die Erwärmung der Brennelemente im Kalorimeter

$U(\mathcal{V}_{BE_\infty})$ = Thermospannung der Brennelementtemperatur für $t \rightarrow \infty$

$U(\mathcal{V}_G)$ = Thermospannung der Gefäßtemperatur

$\frac{a_{BE}}{a_G}$ = 1,00483

a_{BE} = $40,762 \frac{\mu\text{V}}{\text{K}}$

A = 3,9 μV

Die Ergebnisse sind in Spalte 9 von Tab. 5 zusammengestellt. Die gemessenen Werte für die in den Brennelementen absorbierte Nachwärmeleistung betrugen je nach Abbrand und Abklingzeit zwischen 9,3 und 155,2 mW.

Der Maximalwert der gemessenen Gleichgewichtstemperaturdifferenzen $T_{BE_{\infty}} - T_G$, der sich jeweils nach ca. 10 Stunden einstellte, betrug 6,9 K, während die kleinste Temperaturdifferenz bei 0,5 K lag.

Zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse wurden die Messungen an drei Brennelementen wiederholt. Die dabei aufgetretenen Abweichungen der Wiederholungsmessungen betrugen weniger als 2,5 %.

Die Ermittlung der Zeitkonstante für den Temperaturanstieg der Brennelemente während der Messungen im Kalorimeter ergab zum Teil voneinander abweichende Resultate, obwohl bei den gegebenen Randbedingungen ein gleichmäßiger Wert für alle Brennelemente erwartet wurde.

Die Schwankungen sind auf die unterschiedlichen physikalischen Eigenschaften der einzelnen Brennelemente zurückzuführen. Vor allem die Oberflächenbeschaffenheit, die den Wärmestrahlungsaustausch zwischen Brennelement und Kalorimeter beeinflusst, war bei einigen Kugeln sehr verschieden. So hatten z.B. Brennelemente, die vorher einem Ausheiztest unterzogen worden waren, eine sehr raue Oberfläche, während andere Brennelemente glänzten, was durch die mechanische Belastung im Core des Reaktors hervorgerufen wurde.

1	2	3	4	5	6	7	8	9
Brennelement Nr.	BE-Typ	Abbrand (% fima)	Abklingzeit (d)	m_{BE} (g)	$c_{BE}^{+)$ ($\frac{KJ}{kg \cdot K}$)	K_{BE} ($10^{-4} \times \frac{1}{S}$)	$\psi_{BE-\infty} - \psi_G$ (K)	\dot{Q}_a (mW)
AVR-StPr 50/7	GO	8,5	164	197,03		1,44	6,9	155,2
" 50/9	GO	15,1	156	198,69		1,52	3,9	93,7
" 50/11	GO	15,3	161	197,73		1,67	3,9	101,2
" 50/16	GO	4,3	149	200,09		1,63	4,9	127,0
" 50/32	GO	7,4	160	196,52		1,47	5,7	131,2
" 49/28	GO	5,1	504	195,57		1,57	2,2	53,3
" 46/21	GK	15,0	623	196,93		1,43	2,3	51,2
" 46/26	GK	14,9	632	197,84	0,79	1,60	2,2	54,4
AVR-Gr 40/27	GK	15,2	1097	198,97		1,67	1,5	39,0
" 40/3	UCC	16,4	1336	198,08		1,74	1,5	41,3
" 39/44	GK	5,6	1345	191,72		1,37	0,7	15,1
" 38/16	GO	10,0	1357	190,16		1,60	1,1	26,1
" 37/44	UCC	14,8	1350	194,21		1,38	1,4	29,2
" 36/24	GK	14,9	1561	196,28		1,46	1,1	24,4
" 28/23	GK	4,1	1682	198,61		1,25	0,5	9,3
" 28/32	UCC	15,3	1685	194,61		1,71	1,2	32,2
" 27/23	GK	9,3	1687	193,91		1,72	0,8	21,7

+) an gepreßter Graphitkugel gemessen

Tab. 5: ERGEBNISSE DER KALORIMETRISCHEN MESSUNGEN

6. MESSUNG DER VON DEN Brennelementen EMITTIERTEN γ -STRAHLUNGSENERGIE

Die von den radioaktiven Schwermetall- und Spaltproduktisotopen erzeugte γ -Strahlung wird nur zum Teil im Brennelement selbst absorbiert und in Wärme umgewandelt. Der Rest wird in die Umgebung emittiert und kann mit kalorimetrischen Messungen nicht erfaßt werden. Um die gesamte im Brennelement erzeugte Zerfallsenergie bestimmen zu können, mußte der emittierte Anteil an γ -Energie über Dosisleistungsmessungen ermittelt werden.

Für die Durchführung der Dosisleistungsmessungen wurde eine nahezu kontaminationsfreie HEISSE ZELLE mit daran anschließendem Isolierraum ausgewählt, die mit der Versuchseinrichtung in Abb. 13 im Längsschnitt dargestellt ist /12/.

Das Brennelement lag während der Messung auf einem Drahring, der an einem in der Höhe verstellbaren Stativ befestigt war. Als Strahlungsdetektor diente eine Ionisationskammer, die im Isolierraum aufgestellt war. Ein 10 m langes Kabel, das durch einen Spalt an der Verbindungstür zwischen Isolierraum und Beschickungsgang hindurchgeführt werden konnte, stellte die Verbindung zum Dosimeter her, das die Meßwerte im ungünstigsten Meßbereich mit einer Auflösung von 5 mR/h anzeigte. Das Dosimeter ermöglichte in Verbindung mit der verwendeten Ionisationskammer eine weitgehend energie- und richtungsunabhängige Messung der Dosisleistung im Bereich von 30 bis 10^{-5} mR/h.

Zur Messung des Zellenuntergrundes und der Streustrahlung der Brennelemente konnte die Direktstrahlung der Brennelemente durch eine 5 cm dicke Bleiplatte abgeschirmt werden.

Vor Beginn der eigentlichen Messungen wurde in Vorversuchen an zwei Brennelementen mit Abbränden von 14,7 und 16,7 % fima und Abklingzeiten von 180 Tagen bzw. 4,5 Jahren geprüft, ob das quadratische Abstandsgesetz erfüllt wird, um sicherstellen zu können, daß die gewählte räumliche Anordnung von Brennelement und Ionisationskammer für die geplanten Messungen geeignet ist. Das Ergebnis ist in Abb. 14 dargestellt. Beide gemessenen Abstandsfunktionen zeigen eine Gerade

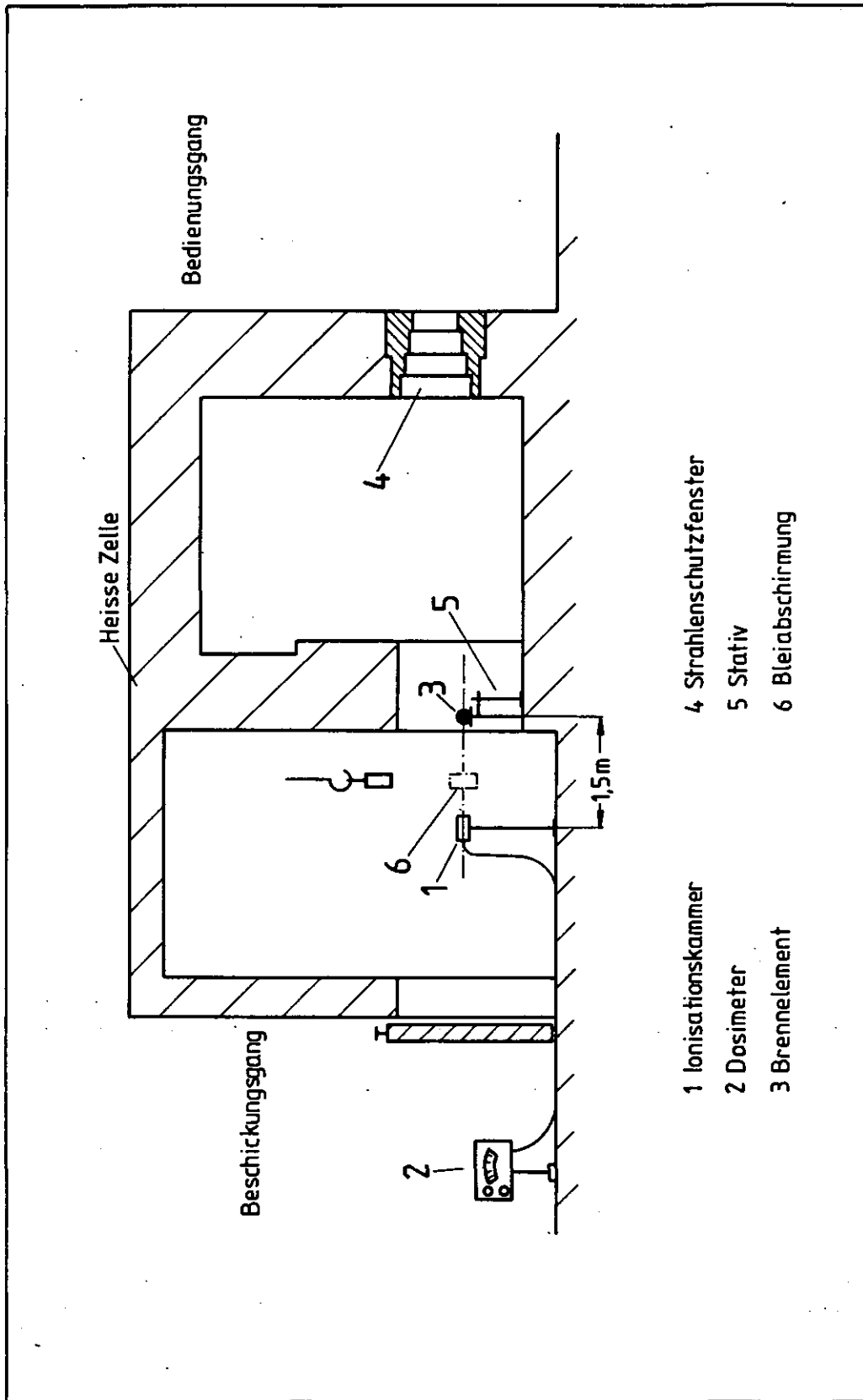


Abb. 13: VERSUCHSAUFBAU ZUR DOSISLEISTUNGSMESSUNG AN EINZELNEN AVR-BRENNELEMENTEN

mit der Steigung von $-2,02$ bzw. $-2,00$. Das quadratische Abstandsgesetz ist damit gut erfüllt, und es darf angenommen werden, daß die Messungen durch Streustrahlung an den Wänden und Einbauten der Zelle nicht verfälscht wurden. Für die Messungen wurde der geringste durch die örtlichen Gegebenheiten begrenzte Abstand zwischen BE und Ionisationskammer von $1,5$ m gewählt, um ein möglichst großes Meßsignal zu bekommen.

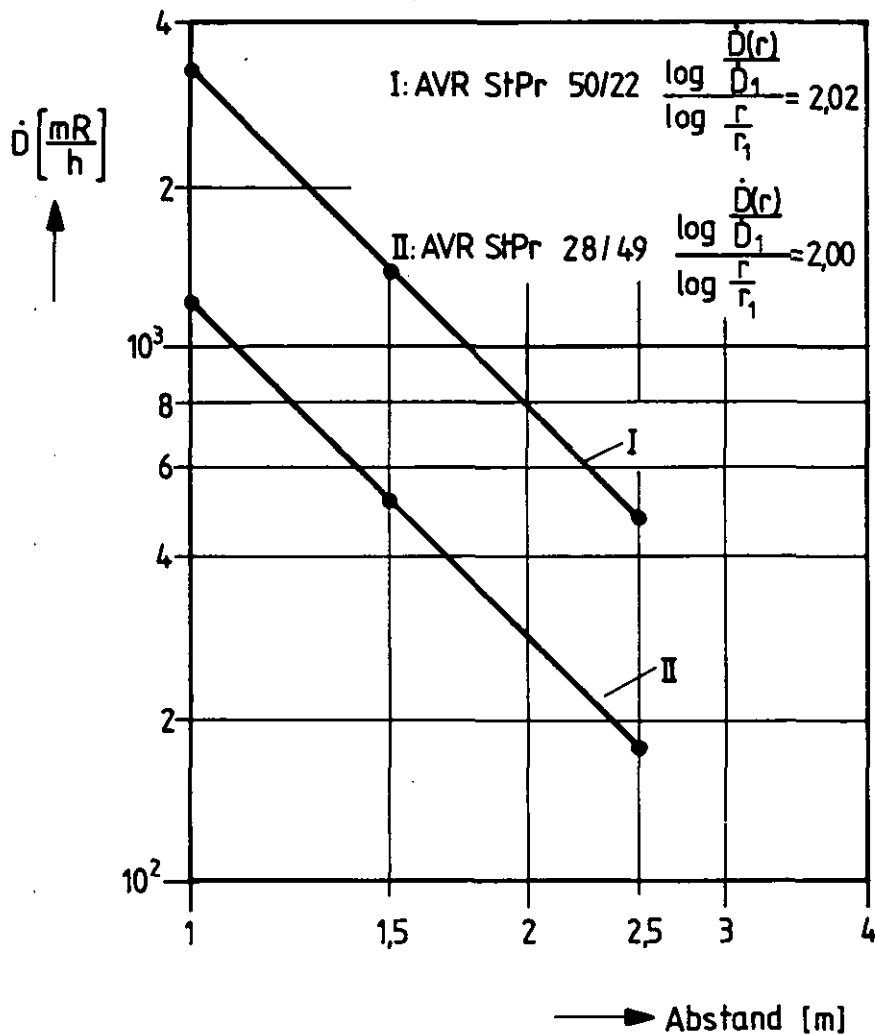


Abb. 14: DOSISLEISTUNG ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE ALS FUNKTION DER ENTFERNUNG

Die Energie, die von den Brennelementen in Form von γ -Strahlung emittiert wird, lässt sich über die gemessenen Dosisleistungen berechnen. Grundlage ist dabei die Tatsache, daß ein Röntgen der Absorption von $7,07 \cdot 10^4$ MeV pro cm^3 Luft im Normalzustand (trocken, 0°C , 760 Torr) entspricht. Diese Energie ist in Luft konstant, weil oberhalb einer Photonenenergie von 20 keV die zur Erzeugung eines Ionenpaares benötigte Energie im Mittel stets 34 eV beträgt [11/.

Demgegenüber ist die zur Erzeugung von einem Röntgen notwendige Strahlungsmenge von der Energie der Photonen abhängig. Diese Abhängigkeit wird mit dem Absorptionskoeffizienten μ_a beschrieben, der für die entsprechende Photonenenergie angibt, wieviel der insgesamt ankommenden γ -Strahlung absorbiert wird. Für eine Photonenenergie von 0,8 MeV, die ungefähr der mittleren Energie der γ -Strahlung eines AVR-Brennelementes entspricht, entnimmt man der Literatur für Luft einen Absorptionskoeffizienten von $\mu_a = 3,734 \cdot 10^{-5} \text{ 1/cm}$ [21/]. Demnach beträgt der Photonen-Energiefluß, der zur Erzeugung von 1 R/h mit Photonen von 0,8 MeV benötigt wird,

$$I_0 (1 \text{ R/h}) = \frac{7,07 \cdot 10^4}{3,734 \cdot 10^{-5}} \frac{\text{MeV} \cdot \text{cm}}{\text{cm}^3 \cdot \text{h}} = 5,25 \cdot 10^5 \frac{\text{MeV}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$$

$$= 8,4 \cdot 10^{-5} \frac{\text{mW}}{\text{cm}^2} \quad (29)$$

Bei einer in einem Abstand von $r = 1,5 \text{ m}$ gemessenen Dosisleistung von 1 R/h beträgt damit die pro Brennelement emittierte γ -Strahlungsenergie

$$\dot{Q}_{\gamma e} (1 \text{ R/h}) = I_0 (1 \text{ R/h}) \cdot 4 \cdot \pi \cdot r^2 = 23,75 \text{ mW} \quad (30)$$

In Tab. 10 sind die Ergebnisse der Dosisleistungsmessungen an den einzelnen Brennelementen sowie die emittierte γ -Strahlungsenergie angegeben.

Brennelement Nr.	Abbrand (% fima)	Abklingzeit (d)	\dot{D} ($r = 1,5$ m) (mR/h)	$\dot{Q}_{\gamma e}$ (mW)
AVR-StPr 50/7	8,5	164	1455	34,5
" 50/9	15,1	156	1455	34,5
" 50/11	15,3	161	1505	35,7
" 50/16	4,3	149	1215	28,8
" 50/32	7,4	160	1275	30,2
" 49/28	5,1	504	305	7,2
" 46/21	15,0	623	855	20,3
" 46/26	14,9	632	1080	25,6
AVR-Gr 40/27	15,2	1079	676	16,0
" 40/3	16,4	1336	750	17,8
" 39/44	5,6	1345	171	4,0
" 38/16	10,0	1357	400	9,5
" 37/44	14,8	1350	678	16,1
" 36/24	14,9	1561	420	9,9
" 28/23	4,1	1682	100	2,3
" 28/32	15,3	1685	490	11,6
" 27/23	9,3	1687	262	6,2

Tab. 10: DOSISLEISTUNG UND γ -STRAHLUNGSENERGIE ABGEBRANNTER
AVR-BRENNELEMENTE

7: ERGEBNISSE

7.1 Nachwärmeleistung abgebrannter AVR-Brennelemente

Von der im Brennelement erzeugten Strahlung wird die gesamte α - und bis auf einen vernachlässigbaren Teil die β -Strahlung im Brennelement selbst absorbiert und in Wärme umgewandelt, während ein Teil der γ -Strahlung vom Brennelement emittiert und erst in der Umgebung (z.B. Abschirmung) absorbiert wird.

Die im Brennelement absorbierte Wärme wurde mit kalorimetrischen Messungen bestimmt. Der aus dem Brennelement emittierte Anteil der γ -Strahlungsenergie konnte über Dosisleistungsmessungen ermittelt werden. Für die gesamte in einem Brennelement entstehende Nachwärmeleistung gilt somit:

$$\dot{Q}_M = \dot{Q}_a + \dot{Q}_{\gamma e} \quad (31)$$

\dot{Q}_M = Nachwärmeleistung eines abgebrannten AVR-Brennelementes

\dot{Q}_a = im Brennelement absorbierter Anteil der Strahlungsenergie

$\dot{Q}_{\gamma e}$ = vom Brennelement emittierte γ -Strahlungsenergie

In Tab. 11 sind alle Ergebnisse der Nachwärmeleistungsmessungen zusammengefaßt (Spalte 5 bis 7). Neben den gemessenen Werten werden auch die mit dem Rechenprogramm ORIGIN ermittelten Nachwärmeleistungen dargestellt und mit den Meßergebnissen ins Verhältnis gesetzt (Spalte 8 und 9). Die gemessenen Nachwärmeleistungen lagen je nach Abbrand und Abklingzeit der Brennelemente zwischen 11,6 mW und 189,7 mW. Die ORIGIN-Rechnungen zeigen zum Teil erheblich höhere Werte, die zwischen 13 mW und 276 mW liegen. Desweiteren werden in Tab. 11 der Brennelementtyp, der Abbrand sowie die Abklingzeit zum Zeitpunkt der kalorimetrischen Messungen angegeben.

1	2	3	4	5	6	7	8	9
Brennelement Nr.	Typ	Abbrand (% fima)	Abklingzeit (d)	\dot{Q}_a (mW)	Messung		Rechnung	$\frac{\dot{Q}_M}{\dot{Q}_R}$
					\dot{Q}_{ye} (mW)	\dot{Q}_M (mW)		
AVR-StPr 50/7	G0	8,5	164	155,2	34,5	189,7	240	0,78
" 50/9	G0	15,1	156	93,7	34,5	128,2	163	0,78
" 50/11	G0	15,3	161	101,2	35,7	136,9	161	0,85
" 50/16	G0	4,3	149	127	28,8	155,8	276	0,56
" 50/32	G0	7,4	160	131,2	30,2	161,4	242	0,66
" 49/28	G0	5,1	504	53,3	7,2	60,5	76	0,80
" 46/21	GK	15,0	623	51,2	20,3	71,5	81	0,88
" 46/26	GK	14,9	632	54,4	25,6	80	81	0,98
AVR-Gr 40/27	GK	15,2	1097	39	16	55	55	1,00
" 40/3	UCC	16,4	1136	41,3	17,8	59,1	56	1,05
" 39/44	GK	5,6	1345	15,1	4	19,1	22	0,87
" 38/16	G0	10,0	1357	26,1	9,5	35,6	38	0,94
" 37/44	UCC	14,8	1350	29,2	16,1	45,3	47	0,96
" 36/24	GK	14,9	1561	24,4	9,9	34,3	41	0,83
" 28/23	GK	4,1	1682	9,3	2,3	11,6	13	0,89
" 28/32	UCC	15,3	1685	32,2	11,6	43,8	42	1,04
" 27/23	GK	9,3	1687	21,7	6,2	27,9	29	0,96

\dot{Q}_M = gemessene Nachwärmeleistung

\dot{Q}_a = im Brennelement absorbierte Wärme

\dot{Q}_R = berechnete Nachwärmeleistung (ORIGEN)

\dot{Q}_{ye} = Energie der emittierten γ -Strahlung

Tab. 11: ERGEBNISSE DER NACHWÄRMEMESSUNGEN AN EINZELNEN AVR-BRENNELEMENTEN

7.2 Vergleich mit berechneten Nachwärmeleistungen

Die Nachwärmeleistung abgebrannter AVR-Brennelemente wurde mit dem Rechenprogramm ORIGIN unter Berücksichtigung verschiedener Abbrandzustände und Abklingzeiten vorausberechnet / 1 /.

Die in der vorliegenden Arbeit gewonnenen Meßergebnisse wurden diesen berechneten Werten gegenübergestellt. Dazu wurde das Verhältnis zwischen gemessener und berechneter Nachwärmeleistung in einem Balkendiagramm aufgetragen (Abb. 15).

Die Brennelemente sind in zwei Gruppen von verschiedenen Abklingzeiten zusammengefaßt, deren Trennung angedeutet ist. In der ersten Gruppe befinden sich alle Brennelemente mit Abklingzeiten bis ca. 150 Tagen, während die zweite Gruppe Brennelemente mit Abklingzeiten zwischen 504 (= 1,38 a) und 1687 (= 4,62 a) Tagen enthält. Die Bezeichnungen in den Balken geben die zugehörigen Brennelementnummern wieder.

Der Vergleich von berechneten mit gemessenen Nachwärmeleistungen ergab folgendes Ergebnis:

1. Die Messungen der Nachwärmeleistung von AVR-Brennelementen mit Abklingzeiten von ca. 150 Tagen erbrachten zum Teil erheblich niedrigere Werte als die Berechnungen.
Dabei ist besonders auffallend, daß die Abweichungen bei Brennelementen mit niedrigen Abbränden besonders groß sind. So wurde für das Brennelement mit dem geringsten Abbrand in dieser Gruppe (AVR-StPr 50/16 in Tab. 11) eine um 44 % niedrigere Nachwärmeleistung gemessen. Demgegenüber war die gemessene Nachwärmeleistung des mit 15,3 % am höchsten abgebrannten Brennelementes dieser Gruppe (AVR-StPr 50/11) nur 15 % kleiner als der Rechenwert.
2. Bei den übrigen Brennelementen, deren Abklingzeit bereits mehr als ein Jahr betrug, konnte relativ gute Übereinstimmung mit den berechneten Nachwärmeleistungen festgestellt werden. Die größten

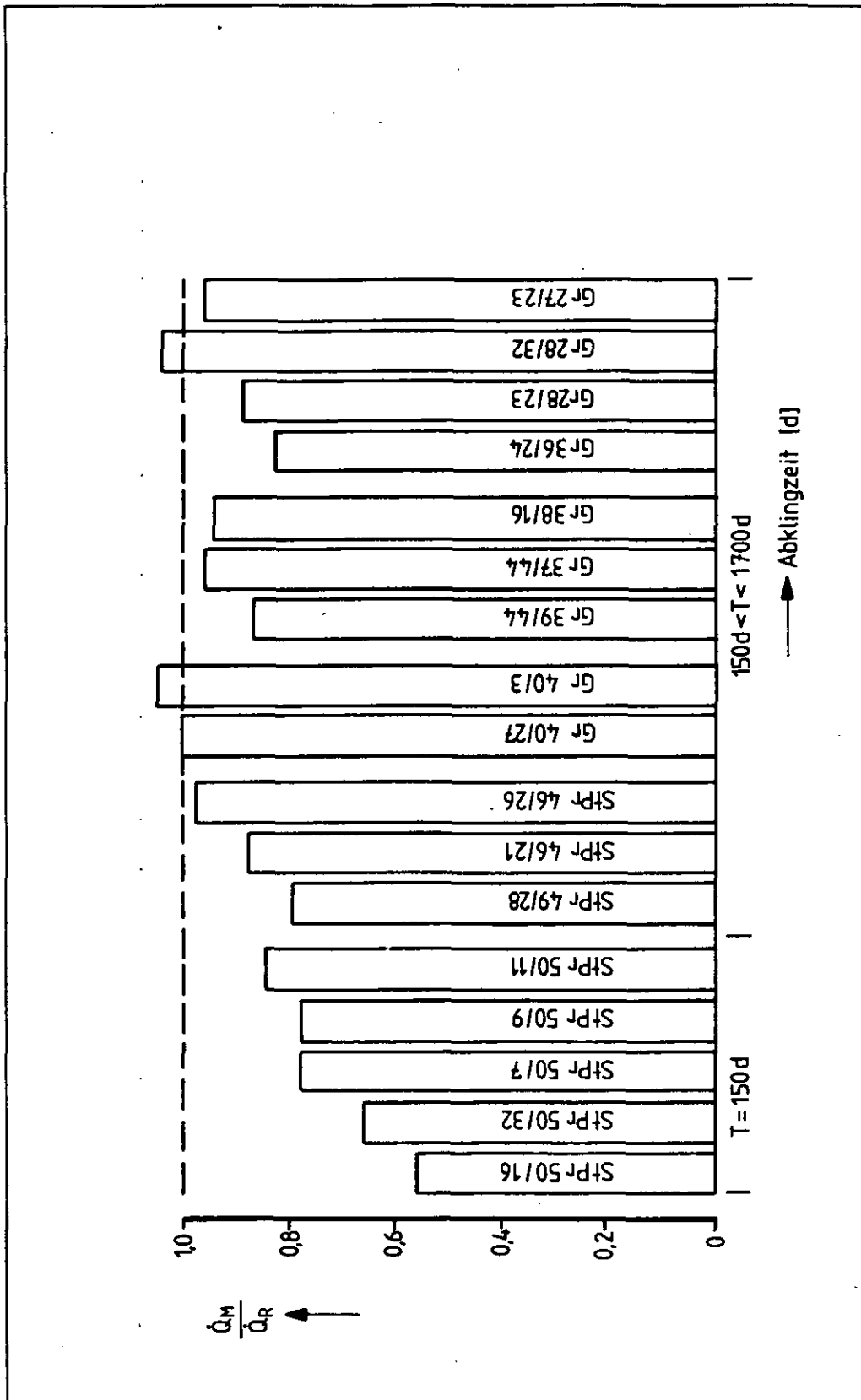


Abb. 15: VERGLEICH ZWISCHEN GEMESSENEN UND BERECHNETEN NACHWÄRMELEISTUNGEN ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE

Abweichungen traten auch hier unabhängig von der Abklingzeit bei Brennelementen mit niedrigen Abbränden auf.

So waren die gemessenen Werte bei diesen Brennelementen bis zu 20 % niedriger.

Demgegenüber waren die Differenzen zu den Rechenwerten bei Brennelementen mit hohen Abbränden am geringsten. An zwei Brennelementen (AVR-Gr 40/3, AVR-Gr 28/32), die gleichzeitig auch die höchsten Abbrände aufwiesen, wurden sogar größere Nachwärmeleistungen als die berechneten gemessen. In einem Fall eines ebenfalls hoch abgebrannten Brennelementes entsprach das Meßergebnis dem Rechenwert.

7.3 Ergebnisdiskussion

Der Vergleich der gemessenen Nachwärmeleistung mit den Ergebnissen des Rechenprogramms ORIGIN hat gezeigt, daß größere Differenzen vor allem bei Brennelementen mit niedrigen Abbränden und kurzen Abklingzeiten auftraten.

Zur Ermittlung der hierfür verantwortlichen Ursachen wurden vor allem bei den Brennelementen mit niedrigen Abbränden und kurzen Abklingzeiten die

- Temperaturmessungen,
- Dosisleistungsmessungen,
- Abbrandmessungen,
- Angaben zu den Abklingzeiten der Brennelemente und
- Angaben über die Spaltproduktinventare der Brennelemente

auf mögliche Fehlerquellen untersucht, um die Abweichungen zwischen Rechen- und Meßergebnissen aufklären zu können.

Temperaturmessungen

Alle Temperaturmessungen wurden mit Meßgeräten durchgeführt, die auf eine Absoluttemperaturmessung von $\pm 0,1$ K geeicht waren. Demnach hätte der maximale Temperaturmeßfehler bei dem Brennelement mit der geringsten Nachwärmeleistung ± 20 % betragen können, weil dieses nur sehr kleine Temperaturerhöhungen während der Messungen im Kalorimeter erzeugte.

Jedoch gerade die Brennelemente, deren Nachwärmeleistung stark von den ORIGEN-Rechenwerten abwich, produzierten wegen ihrer kurzen Abklingzeiten (ca. 150 d) wesentlich mehr Nachwärme, die viel größere Temperaturerhöhungen bei den kalorimetrischen Messungen erzeugte, wodurch ein Meßfehler auf weniger als ± 5 % begrenzt werden konnte.

Daher darf ausgeschlossen werden, daß die gemessenen Abweichungen von den Rechenwerten durch große Temperaturmeßfehler verursacht wurden.

Dosisleistungsmessungen

Ein Maß für die Genauigkeit der Dosisleistungsmessungen und auch der kalorimetrischen Messungen liefert das Verhältnis der aus dem Brennelement emittierten und der insgesamt von den Spaltprodukten erzeugten γ -Strahlungsenergie.

Dieses Verhältnis, das im folgenden mit γ -Emissionsfaktor bezeichnet wird, ist für alle Abbrände und Abklingzeiten nahezu konstant, weil die mittlere Photonenenergie der γ -Strahlung, die den Anteil der aus dem Brennelement emittierten γ -Strahlung bestimmt, für alle annähernd gleich ist.

Für den γ -Emissionsfaktor gilt:

$$E_Y = \frac{\dot{Q}_{Ye}}{\dot{Q}_Y} = \frac{\dot{Q}_{Ye}}{\dot{Q}_M \cdot \frac{\dot{Q}_{YR}}{\dot{Q}_R}} = \text{Const.} \quad (32)$$

mit $\dot{Q}_M = \dot{Q}_a + \dot{Q}_{Ye}$ und $C = \frac{\dot{Q}_{YR}}{\dot{Q}_R}$ folgt

$$E_Y = \frac{1}{C \cdot \left(1 + \frac{\dot{Q}_a}{\dot{Q}_{Ye}}\right)} = \text{Const.} \quad (33)$$

E_Y = γ -Emissionsfaktor

\dot{Q}_Y = Im Brennelement erzeugte γ -Strahlung

\dot{Q}_{Ye} = Aus dem Brennelement emittierte γ -Strahlung
(mit Dosisleistungsmessungen erfaßt)

\dot{Q}_M = Gemessene Nachwärmeleistung des Brennelementes

\dot{Q}_a = Im Brennelement absorbierte Strahlungswärme

\dot{Q}_{YR} = Im Brennelement erzeugte γ -Strahlung
(mit Rechenprogramm ORIGEN berechnet)

\dot{Q}_R = Mit Rechenprogramm ORIGEN berechnete Nachwärmeleistung
des Brennelementes

Der γ -Emissionsfaktor läßt sich, wie aus Gl. (33) hervorgeht, als Funktion der im Brennelement absorbierten Strahlungsenergie sowie der aus dem Brennelement emittierten γ -Energie darstellen, die in zwei voneinander unabhängigen Messungen ermittelt wurden. Grobe Meßfehler bei einer der beiden Messungen hätte zu starken Streuungen des γ -Emissionsfaktors geführt, wenn man annimmt, daß die Wahrscheinlichkeit dafür gering ist, daß in beiden Messungen gleichermaßen falsch gemessen wurde.

In Tab. 12 sind die ermittelten γ -Emissionsfaktoren der AVR-Brennelemente zusammengestellt. Als Mittelwert wurde $\bar{\epsilon}_{\gamma} = 0,70$ mit einer Standardabweichung von 0,07 errechnet.

Daraus läßt sich erkennen, daß weder bei den Dosisleistungsmessungen noch bei den kalorimetrischen Messungen Meßfehler auftraten, die zu den erheblichen Abweichungen geführt haben können.

Abbrandmessung

Der Abbrand wurde für jedes Brennelement einzelnen über γ -spektrometrische Messungen des Cs-137 ermittelt. Wie oben bereits beschrieben (S. Kapitel 3.1), beträgt der Meßfehler dabei etwa $\pm 5\%$, so daß die Abbrandmessungen als Ursache für die größeren Differenzen zwischen berechneten und gemessenen Nachwärmeleistungen ebenfalls ausgeschlossen werden können. Darüber hinaus wirken sich Fehler bei Abbrandmessungen, insbesondere bei hoch abgebrannten Brennelementen mit langen Abklingzeiten besonders stark aus. Diese Brennelemente wiesen jedoch gute Obereinstimmung mit den rechnerisch ermittelten Nachwärmeleistungen auf.

Brennelement- Nr.	$\frac{\dot{Q}_a}{\dot{Q}_{Ye}}$	$C = \frac{\dot{Q}_{YR}}{\dot{Q}_R}$	E_Y
AVR-StPr 50/7	4,49	0,30	0,61
" 50/9	2,71	0,40	0,67
" 50/11	2,83	0,39	0,67
" 50/16	4,40	0,30	0,62
" 50/32	4,34	0,29	0,65
" 49/28	7,40	0,15	0,79
" 46/21	2,52	0,40	0,71
" 46/26	2,12	0,40	0,80
AVR-Gr 40/27	2,43	0,43	0,68
" 40/3	2,32	0,44	0,68
" 39/44	3,77	0,26	0,80
" 38/16	2,74	0,36	0,74
" 37/44	1,81	0,43	0,82
" 36/24	2,46	0,41	0,70
" 28/23	4,04	0,28	0,71
" 28/32	2,77	0,41	0,65
" 27/23	3,50	0,36	0,62

Tab. 12: γ -EMISSIONSFAKTOR FÜR ABGEBRANNT E AVR-BRENNELEMENTE

Abklingzeiten

Das Coreaustrittsdatum der einzelnen Brennelemente wird bei der Entnahme aus dem Reaktor mit einer Genauigkeit von ± 1 Tag ermittelt. Die angegebenen Abklingzeiten scheiden daher mit Sicherheit als Fehlerquelle aus, weil bei den vorliegenden Abweichungen der Nachwärmeleistung die Abklingzeiten um 110 bis 150 Tage falsch registriert worden sein müßten.

Spaltproduktinventar

Für die fünf Brennelemente, deren gemessenen Nachwärmeleistungen besonders stark von den ORIGEN-Rechenergebnissen abwichen, wurde das Inventar der im wesentlichen an der Nachwärmeerzeugung beteiligten Spaltprodukte der Brennelemente mit γ -spektrometrischen Inventarmessungen ermittelt.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 13 zusammengestellt. Zum Vergleich werden die mit ORIGEN berechneten Aktivitäten der Spaltprodukte angegeben.

Nuklid	StPr 50/7		StPr 50/9		StPr 50/11		StPr 50/16		StPr 50/32	
	A_R	A_M	A_R	A_M	A_R	A_M	A_R	A_M	A_R	A_M
					(Ci)					
Zr-95	3,40	2,40	1,24	0,85	1,17	0,85	6,45	3,05	4,25	2,33
Nb-95	6,60	4,60	2,37	1,60	2,20	1,60	12,30	5,80	8,20	4,48
Ru-106	0,92	1,03	0,59	0,64	0,58	0,62	0,88	0,78	0,93	0,89
Cs-134	1,30	0,65	3,12	2,52	3,10	2,50	0,33	0,21	1,00	0,58
Cs-137	1,50	1,48	2,54	2,71	2,54	2,71	0,87	0,78	1,30	1,25
Ba-137	1,65	1,37	2,36	2,52	2,36	2,52	0,81	0,72	1,28	1,17
Ce-144	13,40	11,80	6,80	4,90	6,70	4,90	13,90	8,80	13,50	9,60
Pr-144	13,40	11,80	6,80	4,90	6,70	4,90	13,90	8,80	13,50	9,60

A_R = mit Rechenprogramm ORIGEN berechnete Aktivität

A_M = γ -spektrometrisch gemessene Aktivität

Tab. 13: GEMESSENE UND BERECHNETE AKTIVITÄTEN DER IM WESENTLICHEN AN DER NACHWÄRMEERZEUGUNG 150 TAGE ALTER AVR-BRENNELEMENTE BETEILIGTEN SPALTPRODUKTE

Die Messungen des Spaltproduktinventars ergaben zum Teil erheblich geringere Aktivitätswerte. Insbesondere bei Spaltprodukten mit kurzen Halbwertszeiten, die zudem einen besonders hohen Anteil an der Nachwärmeleistung der Brennelemente haben, konnten große Differenzen zu den berechneten Aktivitäten beobachtet werden.

Setzt man die aus dem gemessenen Spaltproduktinventar berechneten Nachwärmeleistungen der Brennelemente mit den nach ORIGEN berechneten Werten ins Verhältnis, so zeigen sich hierbei ziemlich exakt die Abweichungen, die auch schon beim Vergleich zwischen den kalorimetrisch und dosimetrisch gemessenen und den mit ORIGEN berechneten Nachwärmeleistungen ermittelt wurden (Tab. 14).

Das mit ORIGEN berechnete Spaltproduktinventar dieser Brennelemente war also größer als das tatsächlich zum Zeitpunkt der Messung in den Brennelementen vorhandene Inventar, womit die Abweichungen zwischen den gemessenen und berechneten Nachwärmeleistungen zu erklären sind.

Brennelement Nr.	$\frac{\dot{Q}_{AM}}{\dot{Q}_R}$ 1)	$\frac{\dot{Q}_M}{\dot{Q}_R}$
AVR-StR 50/7	0,82	0,78
" 50/9	0,78	0,78
" 50/11	0,78	0,85
" 50/16	0,57	0,56
" 50/32	0,67	0,66

1) $\frac{\dot{Q}_{AM}}{\dot{Q}_R}$ = aus gemessenem Spaltproduktinventar berechnet

Tab. 14: VERGLEICH DER DURCH γ -SPEKTROMETRISCHE BZW. KALORIMETRISCHE UND DOSIMETRISCHE MESSUNGEN ERMITTELTEN UND AUF DIE RECHENWERTE BEZOGENEN NACHWÄRMELEISTUNGEN ABGEBRANNTER AVR-BRENNELEMENTE

Sie lassen sich mit der individuellen Bestrahlungsgeschichte erklären, die die Brennelemente während ihres Aufenthaltes im Reaktor erleben.

Das Rechenmodell nimmt für alle Brennelemente einen mittleren und zeitlich konstanten Neutronenfluß an.

In Wirklichkeit durchlaufen die Brennelemente das Reaktorkern auf unterschiedlichen Bahnen mit verschiedenen Neutronenflüssen, die auch während des Durchlaufs noch von der Zeit abhängen und insbesondere im unteren Bereich vor Verlassen des Kernes abnehmen. Außerdem ist die Durchlaufgeschwindigkeit der einzelnen Brennelemente sehr verschieden.

Die Brennelemente des Innernkerns haben bei hohem Neutronenfluß kurze Durchlaufzeiten. Das Außerkern wird von den Brennelementen langsamer und in stark voneinander abweichenden Zeiträumen durchlaufen, die zwischen 150 und 1200 Tagen betragen können. Dazu kommt noch, daß der Neutronenfluß im Außerkern niedriger ist als der bei der Rechnung angenommene mittlere Fluß. Frische Brennelemente werden immer dem Außerkern zugeführt. Deshalb haben Brennelemente mit niedrigem Abbrand in der Regel nur einen Durchlauf durch das Außerkern erlebt. Die Leistung dieser Brennelemente schwankt zum Bestrahlungsende wegen der differierenden Durchlaufzeiten im Außerkern sehr stark.

Bei langen Durchlaufzeiten wirkt die Aufenthaltszeit im unteren Teil des Kernes mit niedrigerem Neutronenfluß bereits als Abklingzeit für die kurzlebigen Spaltprodukte.

Hochabgebrannte Brennelemente durchlaufen zuletzt das Innernkern. Die Abweichungen bei den Nachwärmeleistungen dieser Brennelemente mit kurzen Abklingzeiten (ca. 150 Tage) sind so zu erklären, daß der tatsächliche Neutronenfluß auch im unteren Bereich des Innernkerns niedriger ist als der im ORIGIN angenommene, so daß das Inventar kurzlebiger Spaltprodukte auch bei diesen Brennelementen zu Bestrahlungsende einen niedrigeren Gleichgewichtswert annimmt.

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zeigen also, daß die mit dem Rechenprogramm ORIGIN berechneten Nachwärmeleistungen abgebrannter AVR-Brennelemente mit hohen Abbränden und mit Abklingzeiten von mehr als einem Jahr gut mit den gemessenen Werten übereinstimmen.

Nur bei Brennelementen mit Abklingzeiten von weniger als einem Jahr und niedrigen Abbränden wurden zum Teil erhebliche Abweichungen von den Rechenwerten gemessen.

Da im Reaktorbetrieb nur Brennelemente mit hohem Abbrand zur Lagerung entnommen werden, hat dies für die Praxis keine Bedeutung. Außerdem liegen die Abweichungen von den Rechenwerten auf der sicheren Seite, d.h. bei niedrigeren Werten der Nachwärmeleistung und der Dosisleistung.

8. ZUSAMMENFASSUNG

Für die Entsorgung der Kugelhaufenreaktoren AVR und THTR-300 besteht die Notwendigkeit, Zwischenlagermöglichkeiten für abgebrannte Brennelemente zu schaffen.

Bei der Auslegung der Lager- und Transporteinrichtungen werden die Brennelementdaten Abbrand, Schwermetall- und Spaltproduktinventar und Nachwärmeleistung für Kritikalitätsberechnungen und Dimensionierung von Nachwärmeabfuhr und Abschirmung als Eingangsdaten benötigt.

Abbrand und Spaltproduktinventar werden routinemäßig mit gammaspektrometrischen Messungen ermittelt. Die Nachwärmeleistung, die bei kurzen Abklingzeiten vor allem von der Brennelementleistung unmittelbar vor Bestrahlungsende und nach langen Abklingzeiten (> 1 a) im wesentlichen vom Abbrand abhängt, wurde bisher mit Näherungsformeln oder mit dem im Rechenprogramm ORIGEN zu Bestrahlungsende berechneten Schwermetall- und Spaltproduktinventar für Abbrände zwischen 5 und 15 % fima und Abklingzeiten von 150 Tagen bis zu 3 Jahren berechnet und später auf Abbrände und Abklingzeiten von 20 % fima bzw. 8 Jahre extrapoliert.

Im Zusammenhang mit der Zwischenlagerung von AVR-Brennelementen wurde aus genehmigungstechnischen Gründen gefordert, die rechnerisch ermittelten Nachwärmeleistungen mit Messungen an einzelnen Brennelementen zu vergleichen. Für die im Rahmen dieser Arbeit in den HEISSEN ZELLEN der KFA durchgeführten Messungen wurden 17 AVR-Brennelemente mit Abbränden zwischen 4,1 und 16,4 % fima und Abklingzeiten zwischen 150 Tagen und mehr als 4 Jahren ausgewählt.

Um die im Brennelement entstehende Strahlung, von der ein Teil der γ -Strahlung nicht im Brennelement selbst absorbiert und in Wärme umgewandelt wird, meßtechnisch erfassen zu können, war die Messung von zwei verschiedenen physikalischen Größen erforderlich.

Die im Brennelement in Wärme umgewandelte Strahlungsenergie wurde mit einem isothermen Kalorimeter gemessen. Der aus dem Brennelement emittierte Anteil der γ -Energie wurde über die mit einer Ionisationskammer gemessenen Dosisleistungen ermittelt.

Die Meßergebnisse für Brennelemente mit Abklingzeiten von mehr als einem Jahr stimmen gut mit den im Rechenprogramm ORIGIN gewonnenen Ergebnissen überein.

Bei Brennelementen mit geringer Abklingzeit (150 d) traten erhebliche Abweichungen auf, die für Elemente mit nur ein bis zwei Coredurchläufen (Abbrand ca. 2,5 bis 5 % fima) am größten waren. Diese Abweichungen sind dadurch zu erklären, daß der zeitliche Leistungsverlauf des einzelnen Brennelementes stark unterschiedlich sein kann, aber in die hier diskutierten ORIGIN-Rechnungen nur in Annahme eines Vollastbetriebes mit einem mittleren Verlauf eingeht, allerdings stets im Sinne pessimistischer Aussagen der Rechenwerte.

Insgesamt hat sich gezeigt, daß die Nachwärmeleistung von HTR-Brennelementen für die im Zusammenhang mit der Aufbewahrung verbrauchter Elemente über längere Zeiträume relevanten Abklingzeiten selbst mit dem einfachen ORIGIN-Rechenmodell gut beschrieben werden kann.

9. LITERATUR

- /1/ ^{x)} V. Maly, R. Wagemann,
Daten abgebrannter HTR-Brennelemente,
Teil I: Das AVR-Brennelement
AVR-Hauptabteilung T 1, Jülich,
August 1977
- /2/ ^{x)} H. Müller,
Planung und Stand der Arbeiten zur Bestimmung
der Nachwärme und Strahlung von HTR-Brennelementen,
KFA, IRW-TN-41/78
- /3/ ^{x)} H. Müller,
Aktivität, Nachwärmeleistung und Gamma-Anteil der
Nachwärmeleistung von AVR-Brennelementen nach
langer Kühlzeit,
KFA, IRW-TN-70/78
- /4/ R. Wagemann, M. Wimmers, R. Duwe,
Vergleichende Abbrandbestimmungen an AVR-Brennelementen,
Reaktortagung des Deutschen Atomforums Karlsruhe,
10.-13. April 1973 Tagungsbericht Karlsruhe: ZAED
- /5/ R. Duwe, W. Kühnlein, R. Schröder,
Gamma-spektrometrische Abbrandmessung an kugel-
förmigen Brennelementen,
KFA, Jül-1428,
Juni 1977
- /6/ G. Erdtmann, W. Soyka,
Die γ -Linien der Radionuklide,
Band I, KFA, Jül-1003-AC,
September 1973

- /7/ H. Hick, M. Lammer, H. Nabielek, J. York,
The establishment of complete fission product
inventories for irradiated fuel elements,
Dragon Project Report
May 1971
- /8/ W. Riezler, W. Walcher,
Kerntechnik,
Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart,
1958
- /9/ K. H. Lindackers,
Praktische Durchführung von Abschirmungs-
berechnungen,
Verlag Karl Thieme KG, München,
1961
- /10/ F. Regler,
Einführung in die Physik der Röntgen- und Gammastrahlen,
Verlag Karl Thieme KG, München,
1966
- /11/ ^{x)} R. Tzschaschel,
Kleiner Leitfaden für Strahlenschutzlehrgänge
der Kernforschungsanlage Jülich,
Teil I, KFA, Abteilung Strahlenschutz,
1961
- /12/ ^{x)} P. F. Sauermann,
Kleiner Leitfaden für Strahlenschutzlehrgänge
der Kernforschungsanlage Jülich,
Teil IIa, KFA, Abteilung Strahlenschutz,

- /13/ F. Köhlrausch,
Praktische Physik,
Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart,
1960
- /14/ T. Schmidt,
Kalorimetrische Messung der Energieflußdichte
weicher Röntgenstrahlen,
Diss. Universität Erlangen-Nürnberg,
1971
- /15/ B. Rassow,
Kalorimetrische Energiestrom- und Absorptions-
messungen mit Co-60-Gammastrahlen,
Diss. Freie Universität Berlin,
1964
- /16/ ^{x)} W. Linke, M. Zeller, G. Waschke,
Grundlagen der Wärmeübertragung,
Vorlesung a.d. RWTH Aachen,
1969/70
- /17/ PTB und VDI-Bildungswerk,
Handbuch " Technische Temperaturmessung "
Lehrgang Düsseldorf,
November 1976

- /18/ H. Lindorf,
Temperaturmeßtechnik,
AEG-Sonderdruck, Berlin,
1965
- /19/ G. Westhoff,
Grundlagen und Praxis der Temperaturmessung
und Temperaturregelung,
Vulkan-Verlag Dr. W. Classen, Essen,
1965
- /20/ M. Wimmers,
Das Verhalten kugelförmiger HTR-Brennelemente bei
der Massenerprobung im AVR-Reaktor,
AVR-Hauptabteilung T1, Jülich,
Januar 1977
- /21/ H. Goldstein,
Fundamental aspects of reaktor-shielding,
Eddison-Wesly-Publishing, Company INC.
1959

x) Die mit diesem Zeichen versehenen Zitate betreffen interne, nicht allgemein zugängliche Berichte.